

SUPRALEITENDES ELEKTRONENTUNNELN
ALS METHODE ZUM NACHWEIS
NIEDERFREQUENTER, RESONANTER
SCHWINGUNGSMODEN VON
ZWISCHENGITTERATOMEN IM fcc-METALL BLEI

von
Hermann Adrian
aus
Nürnberg

1981



Digitized by the Internet Archive
in 2026

SUPRALEITENDES ELEKTRONENTUNNELN
ALS METHODE ZUM NACHWEIS
NIEDERFREQUENTER, RESONANTER
SCHWINGUNGSMODEN VON
ZWISCHENGITTERATOMEN IM fcc-METALL BLEI

Den Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg

zur

Erlangung des Doktorgrades

vorgelegt

von

Hermann Adrian

aus

Nürnberg

Als Dissertation genehmigt von den Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Universität Erlangen-Nürnberg



Tag der mündlichen Prüfung:

26. Mai 1981

Vorsitzender der Promotionskommission:

Professor Dr. H. Wegener

Erstberichterstatter:

Professor Dr. G. Saemann-Ischenko

Zweitberichterstatter:

Professor Dr. K. Müller

A. EINLEITUNG	1
B. THEORETISCHER TEIL	4
I. Punktdefekte in fcc-Metallen	4
1. Konfiguration von Zwischengitteratomen und Leerstellen	4
1.1 Konfiguration von Leerstellen in fcc-Metallen	4
1.2 Konfiguration von Einzelzwischengitteratomen in fcc-Metallen	6
1.3 Konfiguration von kleinen Zwischengitteratomagglomeraten	10
2. Dynamisches Verhalten von Punktdefekten	13
2.1 Dynamisches Verhalten der Nachbaratome einer Leerstelle	13
2.2 Dynamisches Verhalten von Zwischengitteratomen und kleinen Agglomeraten	15
3. Erholungsspektrum des spezifischen Widerstandes von fcc-Metallen	24
4. Struktur des Strahlenschadens nach Tieftemperaturbestrahlung mit 10 MeV und 25 MeV Sauerstoffionen	28
II. Supraleitende Tunnelspektroskopie	33
1. Einteilchenzustandsdichte im supraleitenden Zustand	33
1.1 BCS-Theorie schwach koppelnder Supraleiter	33
1.2 Supraleiter mit starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung	35
2. Tunnelstrom durch eine dünne isolierende Barriere	40
2.1 Normalleiter-Isolator-Normalleiter Tunnelkontakt	40
2.2 Normalleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt	43
2.3 Supraleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt	46
3. Auswertung von Tunnelexperimenten	50

	Seite
C. EXPERIMENTELLER TEIL	54
I. Bestrahlungsbedingungen und Probeneigenschaften	54
1. Überblick über die Bestrahlungsexperimente	54
2. Präparation der Tunnelkontakte	56
3. Montage der Proben am Kryostaten	57
4. Probencharakterisierung	59
4.1 Tunnelwiderstände	59
4.2 Reinheit der Bleifilme	60
II. Messungen	62
1. Spezifischer Widerstand und kritische Temperatur	62
2. Messung der Tunnelcharakteristik	63
2.1 Grundsätzliche Überlegungen	63
2.2 Meßelektronik	65
2.3 Fehlerbetrachtung	73
3. Datenaufnahme	75
III. Berechnung der Tunnelzustandsdichte von Blei	77
D. ERGEBNISSE UND DISKUSSION	79
I. Der spezifische Widerstand	79
II. Tunnelspektroskopie	81
1. Leistungsfähigkeit der Methode	81
2. Differentielle Leitfähigkeit, Tunnelzustandsdichte und Phononenstruktur	84
3. Eliashbergfunktion $\alpha^2F(\omega)$	94

4. Weitere Ergebnisse der Tunnelspektroskopie	100
5. Der Tunnelwiderstand	101
III. Die supraleitende kritische Temperatur	104
IV. Andere Experimente zum direkten Nachweis niederfrequenter Phononenmoden von Zwischengitteratomen in fcc-Metallen	106
E. ANHANG	111
F. ZUSAMMENFASSUNG	115
G. LITERATURVERZEICHNIS	118

A. EINLEITUNG

Gitterdefekte in Metallen sind seit mehr als 25 Jahren Gegenstand intensiver Forschungstätigkeit. Dieses Gebiet umfaßt dabei eine große Vielfalt von Erscheinungsformen, beginnend von einer einfachen Leerstelle oder einem isolierten Frenkeldefekt in einem möglichst perfekten Kristall eines Elements, bis zu den komplexen Strukturen und Mechanismen in hochenergetischen Verlagerungskaskaden in metallischen Legierungen und Verbindungen ¹⁻⁴⁾. Schwerpunkt der anwendungsorientierten Forschung ist im Hinblick auf die Reaktortechnologie das Verhalten von Werkstoffen nach Hochdosis-Neutronenbestrahlungen, bei denen im Durchschnitt jedes Atom mehrmals aus seiner momentanen Position verlagert wird ⁵⁾. Da alle Konzepte für eine zukünftige Kernfusion durch Plasmaeinschluß in Magnetfeldern davon ausgehen, diese durch supraleitende Spulen zu erzeugen, hat diese Fragestellung auch für die Supraleitung große Bedeutung erlangt ⁶⁾. Bei einer hohen Anzahl von Verlagerungen pro Atom ist zu erwarten, daß allenfalls Substanzen, deren Eigenschaften nicht stark von einem Platzwechsel in der mikroskopischen Konfiguration der Atome abhängen, wie reine Metalle und ungeordnete Legierungen, solchen bestrahlungsinduzierten Durchmischungen standhalten. Dagegen werden Materialien, deren Eigenschaften stark von der Kristallstruktur abhängen, wie das zum Beispiel bei vielen supraleitenden Verbindungen der Fall ist, in diesen Eigenschaften stets drastisch auf Bestrahlung reagieren ⁷⁻¹¹⁾. In solchen Fällen liefern Bestrahlungsexperimente interessante Korrelationen zwischen den verschiedenen Eigenschaften und haben sich dadurch zu einem eigenständigen Forschungsgebiet entwickelt ¹²⁾. Im Vergleich mit Halbleitern und Isolatoren sind Metalle jedoch relativ unempfindlich, da jener beträchtliche Teil an deponierter Strahlungsenergie, die zu elektronischen Anregungen und nicht zu atomaren Verlagerungen führt, in metallischen Leitern keine Defekte zur Folge hat.

Betrachtet man Gitterdefekte im weitesten Sinne als Abweichung der mikroskopischen Anordnung der Atome von der strengen Periodizität, so sind sie häufig auch die Ursache für wünschenswerte Eigenschaften des Festkörpers. Als Beispiele aus der Supraleitung seien hier genannt das Pinningverhalten von Gitterdefekten und Korngrenzen und die damit verbundene Erhöhung des supraleitenden kritischen Stromes und die Erhöhung des kritischen Feldes mit abnehmender freier Weglänge der Elektronen.

In Anbetracht der Kompliziertheit ausgedehnter Defektstrukturen hat sich die Grundlagenforschung zunächst hauptsächlich dem Studium der mikroskopischen Konfiguration und dem dynamischen Verhalten von isolierten Punktdefekten in reinen Metallen gewidmet. Demgegenüber hat die anwendungsorientierte Forschung eine große Vielfalt experimenteller Ergebnisse, insbesondere über die mechanischen Eigenschaften von Legierungen bei Hochdosisbestrahlungen gesammelt. Die Lücke zwischen isolierten Punktdefekten und der durch Neutronenbestrahlung hervorgerufenen Defektkaskade wird durch eine in den letzten Jahren zunehmende Intensität der Forschung auf dem Gebiet der Defektproduktion und -dynamik in Verlagerungskaskaden mittels Ionenbestrahlung geschlossen.

Trotz der scheinbar einfachen Struktur von isolierten Frenkeldefekten war die mikroskopische atomare Konfiguration und das dynamische Verhalten von Zwischengitteratomen - Schwingungsmoden, Wanderung und Agglomeration - bis in die jüngste Vergangenheit stark umstritten ^{13,14)}. Erst in den letzten Jahren trat zumindest bezüglich der fcc-Metalle eine Änderung dieser Situation ein. Mit Ausnahme von Gold konnte nachgewiesen werden, daß die Widerstandserholung aller fcc-Metalle ^{15,16)} nach Tieftemperaturbestrahlung mit Elektronen einem einheitlichen Schema ¹⁷⁾ gehorcht. Weiterhin erscheint jetzt gesichert zu sein, daß Zwischengitteratome die $\langle 100 \rangle$ Hantelkonfiguration besitzen und ihre Wanderung für die Erholungsstufe I verantwortlich ist ¹⁸⁻²⁰⁾. Die freie Wanderung bei niedrigen Temperaturen ist eine Begleiterscheinung des Schwingungsverhaltens der $\langle 100 \rangle$ Hantel.

Von theoretischer Seite wurden für diese Konfiguration neben den erwarteten hochfrequenten Phononenmoden überraschenderweise auch niederfrequente resonante Moden ²¹⁻²⁴⁾ und damit verbunden große thermische Auslenkungen vorhergesagt. Obwohl die Auswirkung der niederfrequenten Schwingungen auf die elastischen Konstanten von Kupfer ²⁵⁾ und in Mößbauerexperimenten ²⁶⁻²⁸⁾ beobachtet wurden, zeigten Neutronenbeugungsexperimente ²⁹⁻³¹⁾ zum direkten Nachweis der von ihnen hervorgerufenen Anomalie in der Phononendispersionsrelation ^{32,33)} keine eindeutigen Ergebnisse. Als Beitrag zur Klärung dieser wichtigen Frage wurde in dieser Arbeit der Versuch unternommen, die Schwingungsmoden von bestrahlungsinduzierten Gitterdefekten eines fcc-Metalls mittels der supraleitenden Tunnelspektroskopie direkt zu beobachten. Bei starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung bietet die mikroskopische Theorie der Supraleitung ³⁴⁻³⁶⁾ die Möglichkeit, die Eliashbergfunktion $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ aus der Messung der differentiellen Leitfähigkeit eines supraleitenden Tunnelkontaktes

zu berechnen³⁷⁻³⁹⁾. Hierbei ist $\alpha^2 F(\omega)$ das mit der Elektron-Phonon-Wechselwirkung gewichtete Phononenspektrum $F(\omega)$. In einfachen Metallen erweist sich der Kopplungsparameter α häufig als energieunabhängig, so daß $\alpha^2 F(\omega)$ und $F(\omega)$ einander direkt proportional sind. In günstigen Fällen wie Blei gelingt die Ermittlung von $\alpha^2 F(\omega)$ mit einer Präzision, die der Bestimmung des Phononenspektrums durch Messung der Phononendispersionsrelationen entlang von Symmetrierichtungen des Kristalls und anschließendem Born-v.Karman-Fit überlegen sein kann. Neben der Eliashbergfunktion $\alpha^2(\omega)F(\omega)$, der in der Theorie der Supraleitung⁴⁰⁻⁴²⁾ zentrale Bedeutung zukommt, liefert die supraleitende Tunnelspektroskopie eine Fülle weiterer Informationen über den Festkörper³⁹⁾. Dadurch wird sie für das mikroskopische Verständnis eines Supraleiters zur wertvollsten Untersuchungsmethode. Dem steht allerdings entgegen, daß die Präparation geeigneter Tunnelkontakte insbesondere bei den interessanten Materialien mit hohen kritischen Temperaturen oder hohen kritischen Magnetfeldern besondere Probleme bereitet.

Die supraleitende Tunnelspektroskopie wird in dieser Arbeit als Hilfsmittel benutzt, um auf dem Umweg über die Supraleitung bestrahlungsinduzierte Änderungen des Phononenspektrums zu studieren. Die Schwierigkeit hierbei ist, daß die erwarteten Effekte extrem klein sind, da in reinen Metallen die maximale mögliche Konzentration von Frenkeldefekten von der Größenordnung 10^{-3} ist. Als Substanz wurde Blei gewählt, weil es einerseits als fcc-Metall bezüglich des Strahlenschadens und der Defektstruktur vergleichsweise gut verstanden ist⁴³⁾ und seine supraleitenden Eigenschaften nach Bestrahlung mit Ionen von S. Klau-münzer^{44,45)} sehr genau gemessen wurden. Andererseits bietet Blei als stark koppelnder Supraleiter mit großer Kohärenzlänge optimale Voraussetzung für die supraleitende Tunnelspektroskopie und besitzt diesbezüglich geradezu Modellcharakter.

B. THEORETISCHER TEIL

I. Punktdefekte in fcc-Metallen

1. Konfiguration von Zwischengitteratomen und Leerstellen

1.1 Konfiguration von Leerstellen in fcc-Metallen

Eine Einzelleerstelle (LS) wird gebildet, wenn ein regulärer Gitterplatz nicht von einem Atom besetzt ist und in der näheren Umgebung alle Gitterplätze besetzt sind. Durch das Fehlen eines Atoms fallen auch die entsprechenden Bindungskräfte zwischen diesem Atom und seinen nächsten Nachbarn weg. Dadurch ändert sich die insgesamt auf ein Nachbaratom wirkende Kraft. Die Nachbaratome werden deshalb nicht ihre ursprüngliche Position, die sie im idealen Kristall innehätten, behalten, sondern entsprechend der sich ändernden Kräfte relaxieren. In ähnlicher Weise werden auch entferntere Schalen von Nachbaratomen beeinflusst, so daß in der Umgebung einer LS eine Verzerrung des Gitters erfolgt. Scholz und Lehmann²¹⁾ haben numerisch (Computersimulation) die Gleichgewichtslagen der Atome um eine LS in fcc-Metallen berechnet. Verwendet haben sie dazu ein rein repulsives Born-Mayer-Potential (Kristall wird durch Oberflächenkräfte zusammengehalten), dessen Parameter an Kupfer angepaßt wurden. Ihr Ergebnis ist in Abb. 1 und Tabelle 1 dargestellt. Es zeigt sich, daß die LS und das Verzerrungsfeld kubische Symmetrie haben. Dies ist nicht trivial; es wäre auch denkbar, daß zwei gegenüberliegende Atome sehr stark auf die LS zu relaxieren und die übrigen Atome der 1. Schale von der LS wegrücken, also das Verzerrungsfeld axiale Symmetrie hätte. Wie Abb. 1 zeigt, liefert die Rechnung als Minimum der potentiellen Energie, daß die nächsten Nachbarn auf die LS zu relaxieren, die zweitnächsten Nachbarn jedoch von der LS weg relaxieren. Die Verrückungen der Atome sind sehr klein: selbst die nächsten Nachbarn, die bei weitem am stärksten relaxieren, ändern ihren Abstand zum Zentrum der LS nur um etwa 3,5 %. Die hier beschriebene Konfiguration einer LS macht auch plausibel, daß LS eine relativ hohe Aktivierungsenergie für Wanderung haben. Eine effektive Bewegung der LS entsteht, wenn eines der nächsten Nachbaratome die Position der LS einnimmt. Dazu muß es aber den Käfig, der durch die restlichen nächsten Nachbarn gebildet wird, zunächst auseinanderdrücken. Obwohl die dazu nötige Energie anschließend bei der Relaxation um die neue LS wieder frei wird, stellt dies doch eine so hohe Potentialschwelle dar, daß LS erst bei

relativ hoher Temperatur beweglich werden ⁴⁶⁾. Im Falle von Kupfer ^{47,48)} beträgt diese Temperatur etwa 250 K, bei Blei ^{43,49,50)} 150 - 170 K.

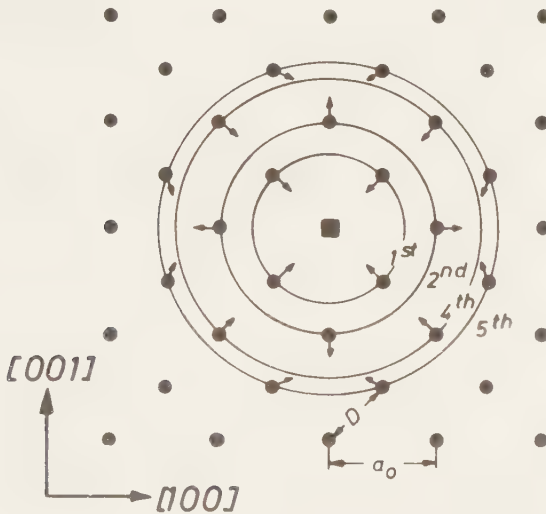


Abb. 1: Gitterrelaxation um eine Leerstelle. ● idealer Gitterplatz, → Richtung der Relaxation, Gitterkonstante a_0 , Abstand nächster Nachbarn $D = a_0 / \sqrt{2}$. Die Kreise kennzeichnen äquivalente nächste Nachbaratome, dritte Nachbaratome liegen nicht in der gezeigten Ebene (nach 21)

Tabelle 1

Atomare Verlagerungen $\underline{s}$ um eine Leerstelle. Der ideale Gitterplatz der Nachbaratome sei bei $\underline{r}$ (nach 21).

Nächste Nachbaratome	$\underline{r}/(a_0/2)$	$100 \cdot \underline{s}/(a_0/2)$
1. Schale	(1,1,0)	(-2.54, -2.54, 0.0)
2. Schale	(2,0,0)	(+0.16, 0.0, 0.0)
3. Schale	(2,1,1)	(-0.53, -0.50, +0.70)
4. Schale	(2,2,0)	(-0.90, -0.90, 0.0)
5. Schale	(3,1,0)	(-0.04, -0.09, 0.0)

1.2 Konfiguration von Einzelzwischengitteratomen in fcc-Metallen

Ein Einzelzwischengitteratom (ZGA) erhält man durch Hinzufügen eines einzelnen Atoms ins Innere eines idealen Kristalls. Im fcc-Gitter stehen die in Abb. 2 dargestellten Konfigurationen als mögliche stabile Lagen für ZGAe zur Diskussion.

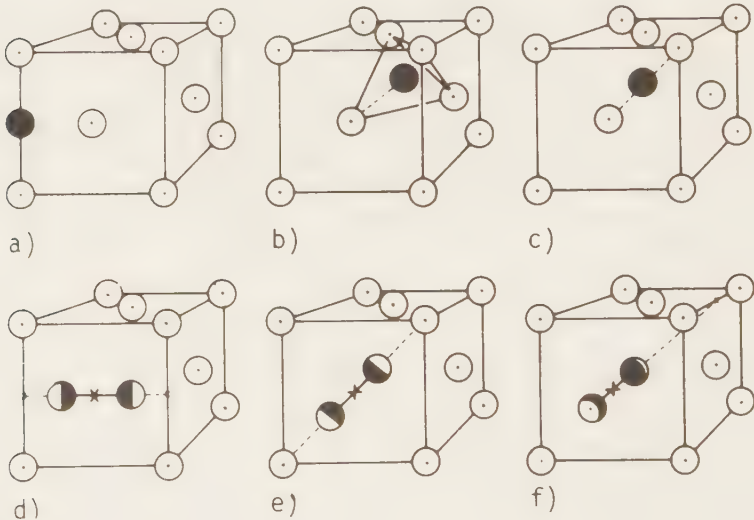


Abb. 2

Mögliche Konfigurationen eines Einzelzwischengitteratoms in fcc-Metallen:

- a) Oktaederlage, b) Tetraederlage, c) Crowdion, d) $\langle 100 \rangle$ -Hantel, e) $\langle 110 \rangle$ -Hantel, f) $\langle 111 \rangle$ -Hantel

Bei den ersten drei Konfigurationen ist das ZGA in eine Lücke zwischen die regulären Atome gedrückt (a: Oktaederlücke; b: Tetraederlücke, c: zwischen zwei Atome auf einer dichtest gepackten $\langle 110 \rangle$ -Richtung, das sog. Crowdion). Im Gegensatz dazu teilen sich bei den zweiten drei Konfigurationen das ZGA und ein reguläres Atom (split interstitial) gemeinsam in symmetrischer Weise einen regulären Gitterplatz. Die dabei entstehende Hantel (dumbbell) kann in $\langle 100 \rangle$ -Richtung (d), $\langle 110 \rangle$ -Richtung (e) oder $\langle 111 \rangle$ -Richtung (f) zeigen. Bei oberflächlicher Betrachtung könnte man erwarten, daß in der Oktaederlage das Kristallgitter dem ZGA den bei weitem größten Raum zur Verfügung stellt und diese Lage deshalb stabil sein sollte. Da das fcc-Gitter jedoch eine dichteste

Kugelpackung ist, führt ein zusätzliches Atom in jedem Fall zu relativ großen Auslenkungen der Nachbaratome aus ihrer idealen Lage.

Die Bildungsenergien für die verschiedenen Konfigurationen wurden von mehreren Autorengruppen^{24,52-54)} berechnet, wobei meist an Kupfer angepaßte Potentiale verwendet wurden. Sie stimmen darin überein, daß die Energieunterschiede für die Konfigurationen sehr klein sind, ungefähr 0.1 eV bei einer durchschnittlichen Bildungsenergie von 3 - 4 eV. Dies stimmt mit experimentellen Werten für Kupfer überein⁵⁵⁾. Während bis in die jüngste Vergangenheit von verschiedenen Gruppen^{14,56,57)} vor allem auch das Crowdion als Konfiguration bei tiefen Temperaturen mit anschließender Konversion noch diskutiert wird, scheint sich in den letzten Jahren aufgrund vieler theoretischer^{24,52)} als auch experimenteller Ergebnisse^{18-20,58,59)} die Ansicht durchzusetzen, daß in fcc-Metallen die stabile Lage die $\langle 100 \rangle$ Hantelkonfiguration ist. Qualitativ ist es einsichtig, daß es energetisch günstiger sein sollte, wenn sich zwei Atome in symmetrischer Weise einen Gitterplatz teilen als wenn sich das zusätzliche Atom zwischen zwei regulären Gitteratomen befindet.

Die Atome in der Umgebung einer $\langle 100 \rangle$ -Hantel relaxieren aufgrund der veränderten Kräfte entsprechend den atomaren Abständen. Die Computersimulation von Scholz und Lehmann²¹⁾ liefert die in Abb. 3 und Tabelle 2 dargestellten Ergebnisse. Die Veränderungen der atomaren Gleichgewichtslagen sind verglichen mit einer LS sehr viel größer und in den meisten Fällen vom ZGA weg gerichtet. Ebenso wie man bei der LS jedoch auch Veränderungen der Gleichgewichtslage von der LS weg findet, beobachtet man auch Relaxation zum ZGA hin. Im Gegensatz zur Leerstelle hat das Verzerrungsfeld um eine $\langle 100 \rangle$ -Hantel tetragonale Symmetrie.

Während man intuitiv vielleicht eine relativ starke Verlagerung der Nachbaratome entlang der Verbindungslinie der Hantel und ein zigarrenförmiges Verzerrungsfeld erwartet, zeigt die Rechnung (vergl. Abb. 3), daß die nächsten Nachbarn in Hantelrichtung sogar zur Hantel hin verlagert werden. Die Ursache dafür ist, daß jedes Hantelatom den "Käfig" seiner vier nächsten Nachbarn aufweitet, um selbst Platz zu finden. Die dabei ausgeübten Kräfte sind im wesentlichen senkrecht zur Hantelachse gerichtet.

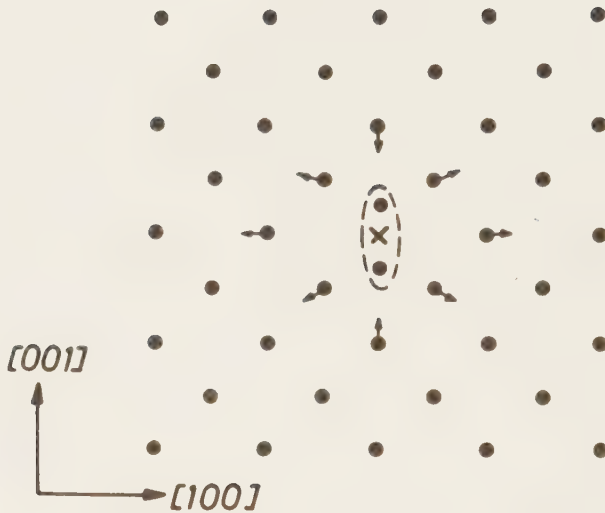


Abb. 3

Gitterrelaxation um ein $\langle 100 \rangle$ -ZGA. ● idealer Gitterplatz, $\rightarrow$ Richtung der Relaxation. X Zentrum der Hantelkonfiguration (nach Ref. 21).

Tabelle 2

Atomare Verlagerung $\underline{s}$ um ein $\langle 100 \rangle$ -ZGA. Der ideale Gitterplatz der Nachbaratome sei bei $\underline{r}$ (nach Ref. 21).

Atomposition $\underline{r}/(a_0/2)$	$100 \cdot \underline{s}/(a_0/2)$
oberes Hantelatome	(0.0, 0.0, +60.4)
(1, 0, 1)	(+16.7, 0.0, +8.9)
(1, 1, 0)	(- 4.6, -4.6, 0.0)
(2, 0, 0)	(+ 2.0, 0.0, 0.0)
(0, 0, 2)	(0.0, 0.0, -1.3)

Eine sehr gute experimentelle Möglichkeit, die Konfiguration von ZGA-Atomen zu bestimmen, bietet die diffuse Röntgenstreuung^{18,20,58}). Die Intensität der diffusen Röntgenstreuung rührt von der Störung des regulären Atomgitters durch ZGA und LS und den von diesen verursachten Verzerrungsfeldern her. Die damit verbundenen Abweichungen vom idealen Kristall führen dazu, daß die destruktive Interferenz zwischen den Bragg-Peaks nicht mehr vollständig ist^{18,60}). Die Intensitätsverteilung der diffusen Röntgenstreuung spiegelt die Position des ZGA und die Symmetrie des damit verbundenen Verzerrungsfeldes bei relativ großen Abweichungen der Atomabstände vom idealen Kristallgitter, d.h. in der Nähe des Defektes, wider. Da die Leerstellen viel kleinere Veränderungen der atomaren Abstände in ihrer Umgebung bewirken, tragen sie sehr viel weniger zur diffusen Streuung bei. Ein typisches experimentelles Ergebnis⁵⁸) für einen mit Elektronen bestrahlten Aluminiumeinkristall (Frenkeldefektdichte 500 ppm) zeigt Abb. 4a. Die daneben stehenden Abbildungen b) - d) zeigen die berechneten Intensitätsverteilungen¹⁸) für die $\langle 100 \rangle$ -Hantel, die Oktaederlage und die Tetraederlage, wobei die dazu benötigten Atompositionen aus einer Rechnung für Kupfer⁵⁴) verwendet wurden. Die charakteristische Struktur der Streuintensität hängt nicht sehr empfindlich von den Details des Verzerrungsfeldes ab, sondern spiegelt im wesentlichen die Position und die Symmetrie des Defektes wider. Die Abb. 4 zeigt, daß es für die $\langle 100 \rangle$ -Hantel eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und berechneten Intensitätsverteilungen gibt, wohingegen die Intensitätsverteilung für die anderen Konfigurationen deutlich verschieden sind. Das trifft auch zu für das Crowdion und die beiden anderen split-interstitial-Konfigurationen¹³). Durch solche Messungen wurde die $\langle 100 \rangle$ -Hantel in den fcc-Metallen Al⁵⁸) und Cu²⁰) eindeutig nachgewiesen.

Die Symmetrie von langreichweitigen Verzerrungsfeldern kann auch mit Hilfe der experimentell leichter zugänglichen sog. Huang-Streuung bestimmt werden⁶¹). Als Huang-Streuung wird die Streuung in der Nähe des Bragg-Peaks bezeichnet. Sie rührt her von geringen Änderungen der atomaren Abstände in den langreichweitigen Verzerrungsfeldern in der Umgebung der Defekte. Dazu muß die Röntgenstreuintensität an den Flanken des Bragg-Peaks über mehrere Zehnerpotenzen vermessen werden. Die daraus erhältliche Information ist streng genommen nicht ausreichend, um eindeutig zwischen verschiedenen ZGA-Konfigurationen entscheiden zu können^{19,59}), es sei denn, man beschränkt die Auswahl auf die hochsymmetrischen Konfigurationen (Oktaederlage, Tetraederlage und split interstitials).

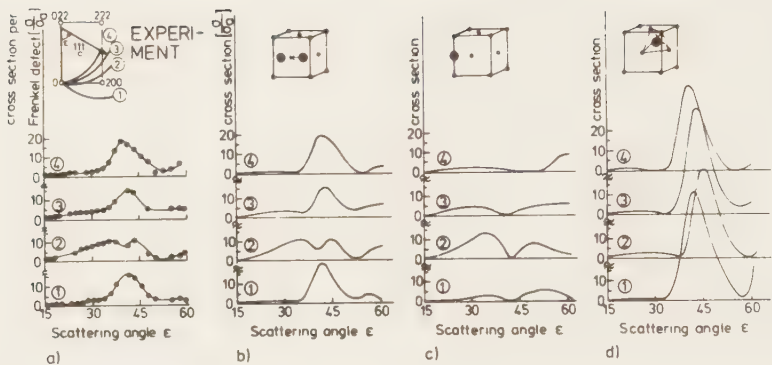


Abb. 4

Vergleich der gemessenen diffusen Röntgenstreuintensität pro Frenkelpaar (a, Al bestrahlt mit 3 MeV Elektronen bei 4,5 K) mit den berechneten Streuintensitäten für verschiedene ZGA-Konfigurationen: b $\langle 100 \rangle$ -Hantel, c Oktaederlage, d Tetraederlage. In a sind zusätzlich die 4 Ewald-Kreise im reziproken Gitter, die den 4 Kurven entsprechen, gezeigt (nach Ref.58).

1.3 Konfiguration von kleinen ZGA-Agglomeraten

Durch thermische Aktivierung können ZGA beweglich werden und durch das Kristallgitter wandern. Geraten sie dabei in die Nähe einer Leerstelle (Rekombinationsvolumen), so vernichten sich die beiden Punktdefekte gegenseitig und zurück bleibt das ideale Atomgitter. Kommen sich jedoch zwei ZGA auf ihrer statistischen Wanderung nahe, so erfahren sie eine relativ starke attraktive elastische Wechselwirkung, die schließlich zur Entstehung eines Doppel-ZGA (DZGA) führt. Da die elastische Energie im Verzerrungsfeld eines DZGA wesentlich kleiner ist als die Summe der elastischen Energien in den Verzerrungsfeldern zweier einzelner ZGA, tritt für das DZGA eine Bindungsenergie von der Größenordnung 1 eV auf⁶²⁾. Für etwas größere Agglomerate unterscheidet sich die Energie im Verzerrungsfeld nahezu nicht bei Hinzufügen eines weiteren ZGA. Demzufolge erreicht die notwendige Energie zur Dissoziation eines ZGA etwa den Wert, der nötig ist, um ein neues ZGA zu bilden: 2 - 4 eV. Dies erklärt die hohen Temperaturen (etwa 300 - 500 K), die nötig sind zur thermischen Dissoziation von ZGA-Agglomeraten¹⁷⁾.

Durch Computer-Simulation wurden für DZGA als stabile Konfiguration in fcc-Metallen zwei benachbarte parallele $\langle 100 \rangle$ -Hanteln bestimmt ⁶³⁾. Experimentell wurde diese Konfiguration (siehe Abb. 5) bisher nur für Al durch diffuse Röntgenstreuung nachgewiesen ¹⁸⁾. Im Falle von Dreifach-ZGA sollte die stabile Konfiguration aus drei benachbarten orthogonalen Hanteln bestehen, wofür es allerdings bisher noch keinen direkten experimentellen Nachweis gibt (Abb. 6).

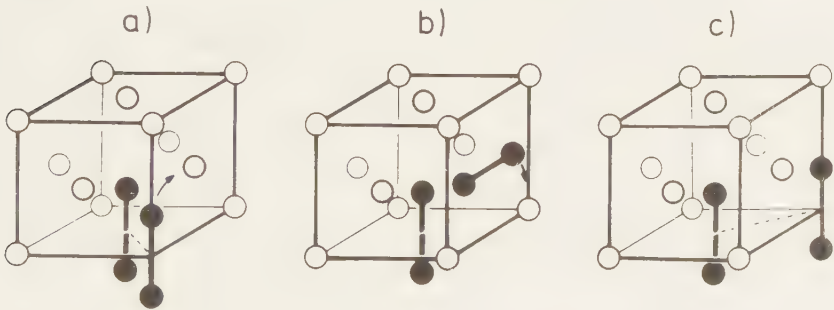


Abb. 5

Konfiguration (a) und Diffusion (von a nach c via b) von DZGA in fcc-Metallen (nach Ref. 63)

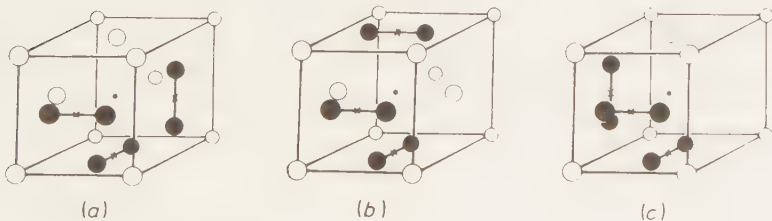


Abb. 6

Konfiguration und Reorientierung des durch Computersimulation ermittelten stabilen ZGA-Agglomerats bestehend aus drei ZGA (nach Ref. 63)

Im Falle von Cu liefert die Computersimulation für ein Vierfach-ZGA die in Abb. 7 gezeigte Konfiguration.

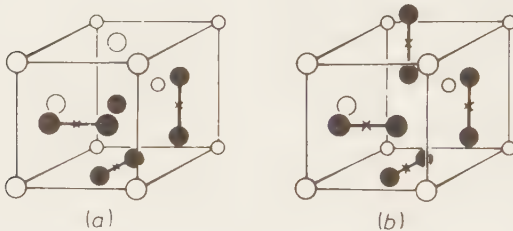


Abb. 7

Wahrscheinliche Konfiguration von Vierfach-ZGA in fcc-Metallen (nach Ref. 63)

Es ist nachgewiesen, daß sehr viel größere ZGA-Agglomerate Versetzungsringe bilden, da die damit verbundene elastische Energie sehr viel kleiner ist als bei einer dreidimensionalen Anhäufung von ZGA. Nach Röntgenstreuexperimenten sollte dieser Übergang von relativ kompakten dreidimensionalen Anordnungen zu den ebenen Versetzungsringen schon bei der relativ kleinen Anzahl von etwa 10 - 15 ZGA erfolgen, was jedoch durch die Computersimulation nicht bestätigt wurde. Es sei noch darauf hingewiesen, daß diese Rechnungen ein besonders stabiles ZGA-Agglomerat bei 7 ZGA liefern. Für die Interpretation der Ergebnisse dieser Arbeit ist es wichtig, daß man davon ausgehen kann, für Agglomeratgrößen bis zu mindestens 10 ZGA im wesentlichen dreidimensionale, kompakte Ansammlungen der $\langle 100 \rangle$ -Hantelkonfiguration vorzufinden^{63,64}.

2. Dynamisches Verhalten von Punktdefekten

2.1 Dynamisches Verhalten der Nachbaratome einer Leerstelle

Im Rahmen der Einstein-Näherung unterscheidet sich das dynamische Verhalten der Nachbaratome einer Leerstelle vom idealen Kristall durch den Ausfall der "Federn", die zu dem fehlenden Atom führen würden (s. Abb. 8). Zerlegt man die möglichen Schwingungen in die drei Symmetrierichtungen, so wird nur die Frequenz der Schwingung auf die Leerstelle zu ($\langle 110 \rangle$ -Richtung) verringert, da durch die fehlende Feder die Rückstellkraft abnimmt. Die Schwingungen in die dazu senkrechten Richtungen ($\langle 1\bar{1}0 \rangle$ und $\langle 001 \rangle$) sollten praktisch unverändert bleiben. Eine genauere Rechnung für Kupfer unter Verwendung des Morse- oder Born-Mayer-Potentials (s. Abschnitt 2.2) liefert das in Abb. 9 dargestellte lokale Schwingungsspektrum⁶⁵⁾. Die Ergebnisse sind für beide Potentiale sehr ähnlich und stimmen qualitativ mit den obigen Aussagen der Einstein-Näherung überein. Insgesamt gesehen verursachen Leerstellen somit keine allzu drastischen Veränderungen des Phononenspektrums.

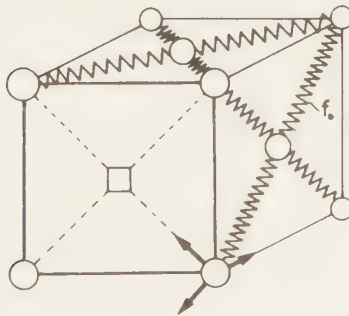


Abb. 8

LS (□) im fcc-Gitter. Die zwischen nächsten Nachbarn wirkenden Kräfte sind durch Federn angedeutet. Die gestrichelten Linien symbolisieren die fehlenden Federn. Die Pfeile zeigen in die Richtungen der betrachteten Schwingungen (nach Ref. 65)

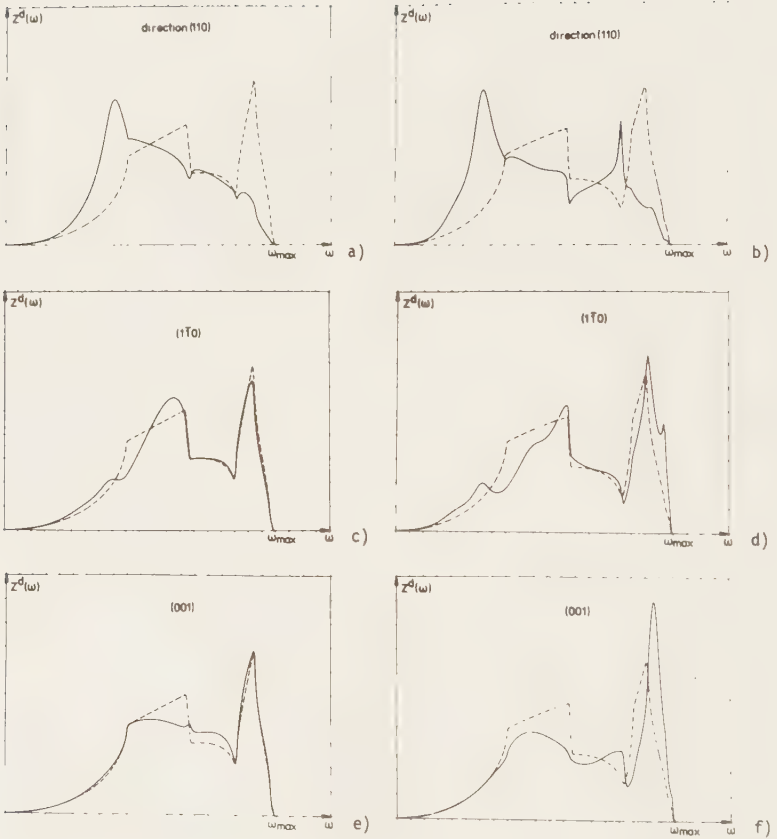


Abb. 9

Lokales Frequenzspektrum eines nächsten Nachbaratoms ($\langle 110 \rangle$) einer LS für Schwingungen in die jeweils angegebene Richtung. Linke Seite: Morse-Potential, rechte Seite: Born-Mayer-Potential (nach Ref. 65)

2.2 Dynamisches Verhalten von Zwischengitteratomen und kleinen Agglomeraten

Die deutlich verringerten atomaren Abstände und die damit verbundenen starken repulsiven Kräfte zwischen den Atomen der $\langle 100 \rangle$ -Hantel und ihrer Nachbarn lassen zunächst erwarten, daß diese Atome Schwingungen mit deutlich höherer Frequenz als im ungestörten Kristall ausführen. Die Computer-Simulation von Scholz und Lehmann^{21,22)} hatte jedoch das unerwartete Ergebnis, daß mit ZGAen auch niederfrequente resonante Schwingungsmoden verbunden sind. Durch spätere Rechnungen von Dederichs und anderen^{65,66)} wurden in harmonischer Näherung mit Hilfe der Greensfunktionenmethode das lokale Schwingungsspektrum von ZGAen berechnet. Die physikalischen Ursachen für das Auftreten niederfrequenter Moden ist das stark komprimierte Gebiet in der Umgebung des ZGA (siehe Abb. 10). Repräsentiert man die bei solchen Rechnungen stets angenommenen Zentralpotentiale durch Spiralfedern, so sieht man ein, daß niederfrequente Schwingungsmoden auftreten können, wenn sie im wesentlichen Auslenkungen senkrecht zu den "Federn" enthalten. Unterstützt werden solche Moden noch durch die Tatsache, daß die stark komprimierten "Federn", die die repulsiven Kräfte eng benachbarter Atome darstellen, instabil sind gegen dazu senkrechte Verschiebungen. Die Schwingungsmode mit der niedrigsten Frequenz ist eine Librationsmode, bei der die Hantelatome gegenphasig senkrecht zur Hantelachse schwingen, so daß die Achse um ihre Ruhelage schwingt. Da die Nachbaratome dabei in die gleiche Richtung schwingen wie die Hantelatome, ändern sich die atomaren Abstände in dem stark komprimierten Gitterbereich nur wenig, die Länge der in Abb. 10a eingezeichneten Spiralfedern bleibt praktisch unverändert, und die Rückstellkräfte sind klein. Zusammen mit der relativ großen an der Schwingung beteiligten Masse führt das zu sehr niedrigen Schwingungsfrequenzen. Eine zweite ähnlich niederfrequente Schwingung ist die Translationsmode: die beiden Hantelatome schwingen gleichphasig entlang der Hantelachse, wobei auch die nächsten Nachbaratome so schwingen, daß sie den Hantelatomen ausweichen. Die Amplitudenverteilung ist in Abb. 10b dargestellt. Da sich die beiden Hantelatome nahezu in der von den nächsten Nachbarn definierten Ebene befinden, nehmen die stark komprimierten "Federn" wiederum kaum an der Schwingung teil, so daß die Rückstellkräfte ebenfalls klein sind. Die schwingende Masse ist näherungsweise gleich der doppelten Atommasse, wodurch die niedrige Frequenz erklärt wird. Eine dritte Schwingungsmode, die auch noch relativ niedrige Frequenz hat, entsteht, wenn die beiden Hantelatome gleichphasig miteinander und mit den nächsten Nachbarn senkrecht zur Hantelachse schwingen. Hierbei sind die

stark komprimierten "Federn" ebenfalls wenig beteiligt und die schwingende Masse ist wiederum relativ groß, woraus eine niedrige Schwingungsfrequenz resultiert.

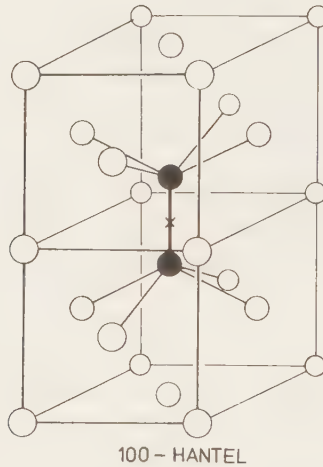


Abb. 10

Konfiguration des $\langle 100 \rangle$ -Hantel-ZGA in fcc-Metallen. Gegenüber den atomaren Abständen im idealen Kristall ($0.707 a_0$) sind die Abstände zwischen den Hantel-Atomen selbst ($\approx 0,6 a_0$) und seinen nächsten Nachbarn ($\approx 0,64 a_0$) deutlich verringert (nach Ref. 65).

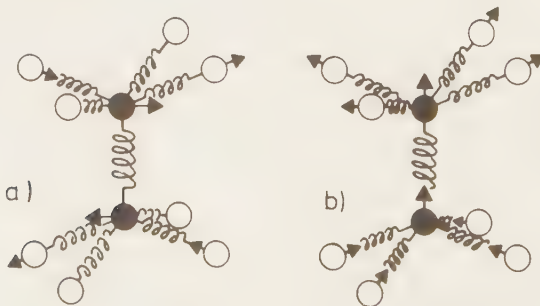


Abb. 11

Schematische Darstellung der atomaren Auslenkungen für die niederfrequenten Schwingungsmoden des $\langle 100 \rangle$ -Hantel-ZGA und seiner nächsten Nachbarn. a: Librationsmode, b: Translationsmode.

Allen drei skizzierten Schwingungsmoden ist gemeinsam, daß die den Hantelatomen benachbarten Gitteratome sich in Phase mit den Hantelatomen bewegen. Wenn auch ihre Schwingungsamplituden und Bewegungsrichtungen nicht genau gleich sind, so hat dies dennoch zur Folge, daß die atomaren Abstände nahezu unverändert bleiben, d.h. die starken repulsiven Kräfte zwischen diesen Atomen ohne Einfluß sind. Diese niederfrequenten Moden sind resonant, d.h. sie liegen in einem Frequenzbereich, in dem auch der ungestörte Kristall Phononmoden besitzt und koppeln deshalb an dessen Phononensystem an.

Der entgegengesetzte Fall sehr hochfrequenter Schwingungen tritt auf, wenn die Hantelatome und die nächsten Nachbaratome gegenphasig schwingen, da dann die atomaren Abstände sich ändern und die damit verbundenen starken Kräfte zwischen diesen Atomen der Auslenkung entgegengerichtet sind. Alle drei zuvor geschilderten Schwingungsmoden, jedoch mit nun gegenphasig schwingenden Nachbaratomen, führen zu hochfrequenten Moden. Bei den bisher beschriebenen Schwingungsformen blieb der Abstand der beiden Hantelatome praktisch unverändert. Eine weitere besonders hochfrequente Mode besteht deshalb darin, daß die beiden Hantelatome in Richtung der Hantelachse gegenphasig zueinander und gegenphasig zu den jeweils vier nächsten Nachbaratomen schwingen.

Die Frequenz dieser vier beschriebenen hochfrequenten Moden ist größer als die maximale Phononenfrequenz des ungestörten Kristalls. Die damit verbundene Schwingungsenergie ist deshalb auf die unmittelbare Umgebung des ZGA lokalisiert, und es besteht keine Kopplung zum Phononenspektrum der ungestörten Umgebung.

Von Dederichs und Mitarbeitern wurde in harmonischer Gittertheorie das lokale Schwingungsverhalten von ZGA berechnet. Für die dazu benötigten Kraftkonstanten verwendeten sie empirische, interatomare Potentiale, deren Parameter an Kupfer angepaßt wurden. Die Potentiale sind gegeben durch die folgenden Ausdrücke^{24,63}):

a) Born-Mayer-Potential

$$V(r) = D e^{-\alpha R} \quad \text{mit } D = 22563 \text{ eV}, \quad \alpha = 13 \cdot \sqrt{2}/a_0$$

b) Morse-Potential

$$V(r) = D(e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2e^{-\alpha(r-r_0)})$$

$$\text{mit } D = 0,18 \text{ eV}, \quad r_0 = 0,7135 a_0, \quad \alpha = 8,3853/a_0$$

c) modifiziertes Morse-Potential

$$V(r) = D (e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2e^{-\alpha(r-r_0)}) + A (r-r_{nn})^4 \cdot \delta(r_{nn}-r) + V_0$$

$$\text{mit } D = 0,23 \text{ eV}, r_0 = 0,7155 a_0, \alpha = 7,650/a_0$$

$$A = -1200 \text{ eV}/a_0^4, V_0 = 0,023 \text{ eV}, r_{nn} = a_0/\sqrt{2}$$

Die Parameter wurden so gewählt, daß bei der Computersimulation die richtige Gitterkonstante, eine Bildungsenergie für Leerstellen von $E_{LS}^F = 1,17 \text{ eV}$ (b) bzw. $E_{LS}^F = 1,29 \text{ eV}$ (c) und ein Kompressionsmodul $\kappa = 1,27 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$ (b) bzw. $\kappa = 1,36 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$ (c) erhalten wurde. Die Potentiale sind in Abb. 12 dargestellt. Bei Verwendung des rein repulsiven Born-Mayer-Potentials wurden zusätzlich Oberflächenkräfte angewandt, da der Kristall sonst sich auflösen würde.

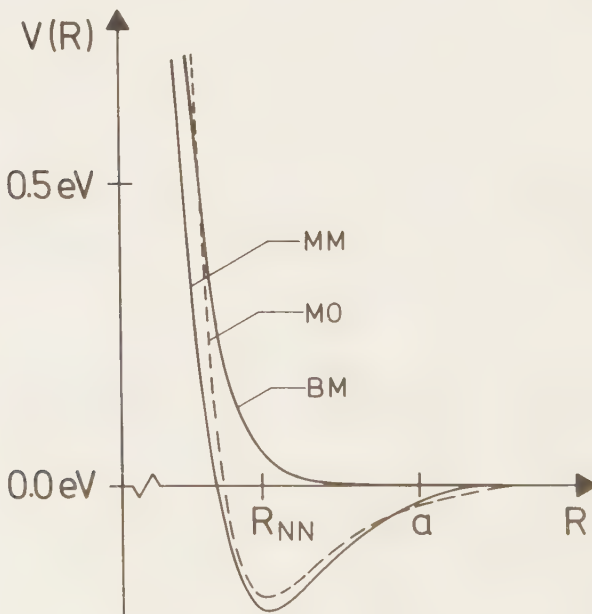


Abb. 12

Empirische interatomare Zentralpotentiale (angepaßt an Cu): Born-Mayer (BM), Morse (MO) und modifiziertes Morse (MM) Potential (nach Ref. 62).

Die Modifikation des Morse-Potentials besteht in einer Abschwächung des repulsiven Anteils für Abstände kleiner als der Abstand nächster Nachbarn

$$r_{nn} = a_0 / \sqrt{2}.$$

Das wichtigste Ergebnis der Rechnung von Dederichs und Mitarbeitern zeigt Abb. 13, wobei die Schwingungsfrequenz in Einheiten der maximalen Schwingungsfrequenz des ungestörten Gitters angegeben sind. Weiterhin ist stets das Phononenspektrum des ungestörten Kristalls eingezeichnet. Zusätzlich zur Klassifizierung der verschiedenen Schwingungsmoden sind in Abb. 13a die Auslenkungen der beiden Hantelatome angedeutet. Die Amplitude des lokalen Schwingungsspektrums ist bezogen auf eine Einheitskonzentration $c = 1$ von Zwischengitteratomen. Obwohl die Struktur der drei verwendeten interatomaren Potentiale sehr verschieden ist, sind die erhaltenen Ergebnisse erstaunlich ähnlich: Es werden stets die zuvor diskutierten drei niederfrequenten resonanten und vier hochfrequenten lokalisierten Schwingungsmoden gefunden, deren frequenzmäßige Reihenfolge identisch ist. Weiterhin besteht Übereinstimmung darin, daß die Hantelatome und ihre nächsten Nachbarn nahezu keine Schwingungen in dem Frequenzbereich ausführen, in dem die Mehrheit der Phononen des ungestörten Kristalls liegen, zwischen $0,35 \omega_{\max}$ und $\omega_{\max}$. Bezüglich der genauen Lage der niederfrequenten resonanten Phononenpeaks und ihrer Amplitude gibt es leichte Unterschiede zwischen den verschiedenen Potentialen. Die zusätzlichen Peaks liegen jedoch stets zwischen $0,1 \omega_{\max}$ und $0,35 \omega_{\max}$ und haben für $c = 1$ eine Amplitude, die dem longitudinalen Phononenpeak des ungestörten Gitters vergleichbar ist. Die überraschende Ähnlichkeit der Ergebnisse für verschiedene Potentiale läßt vermuten, daß - wie vorher bereits ausführlich diskutiert - die auftretenden Schwingungsmoden qualitativ eine direkte Folge der $\langle 100 \rangle$ -Hantelkonfiguration des ZGA sind und bereits durch Geometrie und Symmetrie der fcc-Gitterstruktur bestimmt sind.

Erweitert man die bisherigen Überlegungen auf Doppelzwischengitteratome, so erwartet man aus denselben Gründen ebenfalls wieder niederfrequente resonante und hochfrequente lokalisierte Moden. Eine von Schober und Zeller durchgeführte Rechnung⁶²⁻⁶⁴⁾ liefert für das Morse-Potential und das Born-Mayer-Potential die in Abb. 14 dargestellten Ergebnisse, die wiederum qualitativ sehr ähnlich sind. Aufgrund der nun viel größeren Anzahl von Freiheitsgraden entstehen eine Vielzahl von Schwingungsmoden, so daß einzelne Peaks zum Teil nicht mehr aufgelöst werden. Bemerkenswert ist noch, daß stets knapp unterhalb $\omega_{\max}$ ein zusätzlicher Peak auftritt, der auch im Falle des Einzel-ZGA bei Verwendung des Morse-Potentials schon vorhanden ist.

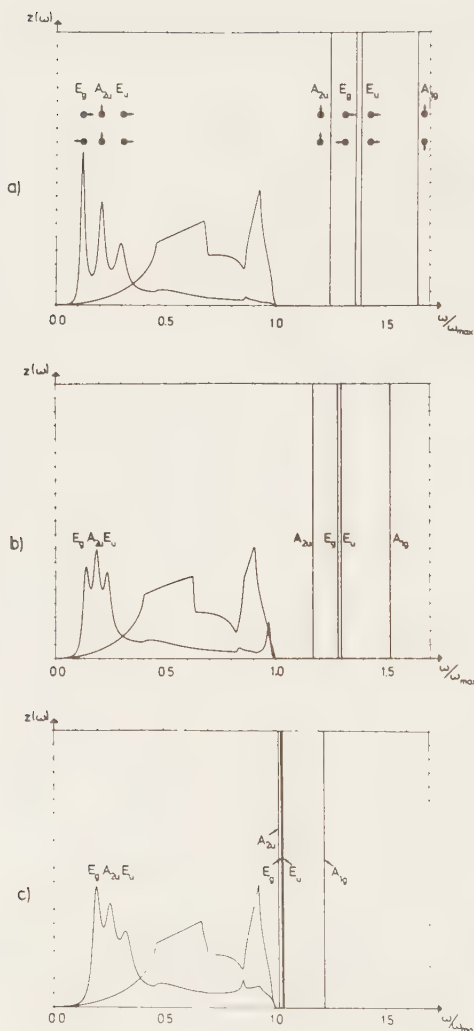


Abb. 13

Lokales Frequenzspektrum eines $\langle 100 \rangle$ -Hantel-ZGA (gemittelt über alle Richtungen) für a: Morse, b: Born-Mayer und c: modifiziertes Morse-Potential. Zum Vergleich ist stets auch das Phononenspektrum des ungestörten Gitters gezeigt (nach Ref.24)

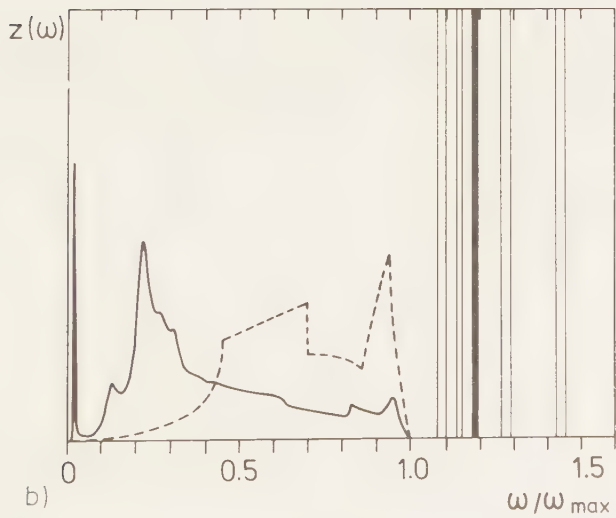
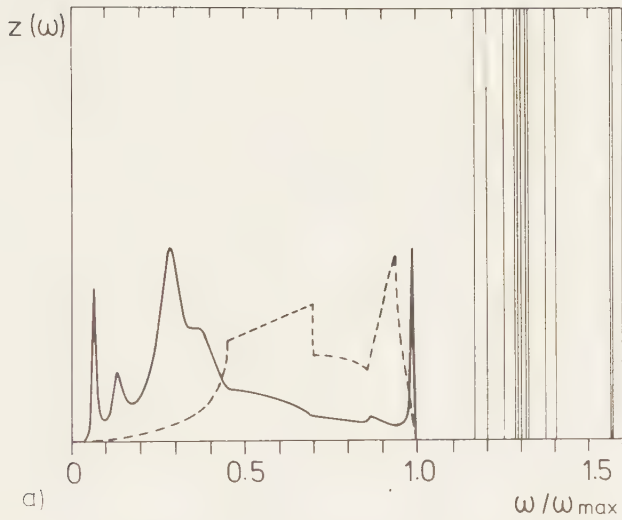


Abb. 14

Lokales Frequenzspektrum eines DZGA in fcc-Metallen (2 parallele $\langle 100 \rangle$ -Hantel-ZGAe auf nächsten Nachbarplätzen). a: Morse-Potential, b: Born-Mayer-Potential. Gestrichelt ist das Phononenspektrum des ungestörten Kristalls (Cu) eingezeichnet (nach Ref. 62).

Da - wie bereits in Abschnitt 1.3 ausgeführt - Zwischengitteratomagglomerate bis zu einer Größe von 10 - 15 ZGA im wesentlichen aus einer dreidimensionalen, dichten Anhäufung von Hantelkonfigurationen bestehen sollten, kann in ihrem Schwingungsspektrum ebenfalls mit dem Auftreten niederfrequenter Moden gerechnet werden. Demgegenüber sollten die zu Versetzungsringen kollabierten größeren ZGA-Agglomerate ein Phononenspektrum haben, das dem des ungestörten Kristalls wieder ähnlich ist.

Eine Folge der niederfrequenten Moden im Schwingungsspektrum der ZGA und kleineren Agglomerate sind große thermische Amplituden. Außerdem konnte durch Computersimulation gezeigt werden, daß die Energie der sog. Sattelpunktkonfiguration zwischen zwei äquivalenten Gleichgewichtskonfigurationen der $\langle 100 \rangle$ -Hantel nur etwa 0.1 eV höher liegt. Demzufolge kommt es sehr leicht zu Reorientierungssprüngen und - sofern damit eine Translation des Schwerpunktes verbunden ist - zu freier Wanderung von ZGA. Auf die genauen Details der durch Computersimulation gefundenen Sprungprozesse, die zudem noch von der Struktur des verwendeten Potentials abhängen, kann in diesem Zusammenhang verzichtet werden. Wie zu erwarten, sind die Schwingungsmoden mit der niedrigsten Frequenz und damit größten thermischen Amplitude bzw. eine Kombination von verschiedenen Moden in der Struktur der Sprungprozesse wiederzuerkennen. Exemplarisch ist dies an Abb. 15 für Einzel-ZGA dargestellt. Die niedrigste Aktivierungsenergie besitzt demnach ein Sprung, der zusammengesetzt ist aus einer Rotation und einer Translation, herrührend von Librations- und Translationsmoden. Auch Doppel-ZGA sollten noch Aktivierungsenergien für freie Wanderung in der Größenordnung von 0.1 eV haben, während mit zunehmender Agglomeratgröße die Aktivierungsenergien rasch anwachsen.

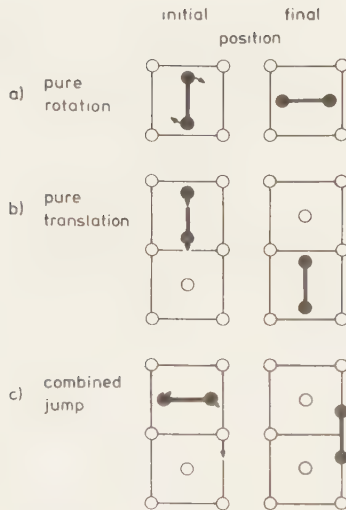


Abb. 15

Schematische Darstellung von drei verschiedenen Sprungprozessen des $\langle 100 \rangle$ - Hantel-ZGA in fcc-Metallen (nach Ref. 13).

3. Erholungsspektrum des spezifischen Widerstandes von fcc-Metallen

Bei Tieftemperaturbestrahlung mit hochenergetischen Elektronen (≈ 1 MeV) werden einzelne Frenkeldefekte erzeugt, da die maximale übertragene Energie nur zur Verlagerung eines Atoms aus seinem regulären Gitterplatz ausreicht. Dieses sogenannte primäre Rückstoßatom kann sich nun selbst durch das Zwischengitter bewegen, um, wenn seine überschüssige Energie durch elastische Stöße aufgezehrt ist, zusammen mit einem regulären Atom eine $\langle 100 \rangle$ -Hantel zu bilden. In den letzten Jahren mehren sich jedoch die Hinweise⁶⁷⁻⁷⁰, daß das primäre Rückstoßatom selbst auf einem regulären Gitterplatz zur Ruhe kommt und das ZGA am Ende einer Ersetzungsstoßfolge gebildet wird (Abb. 16).

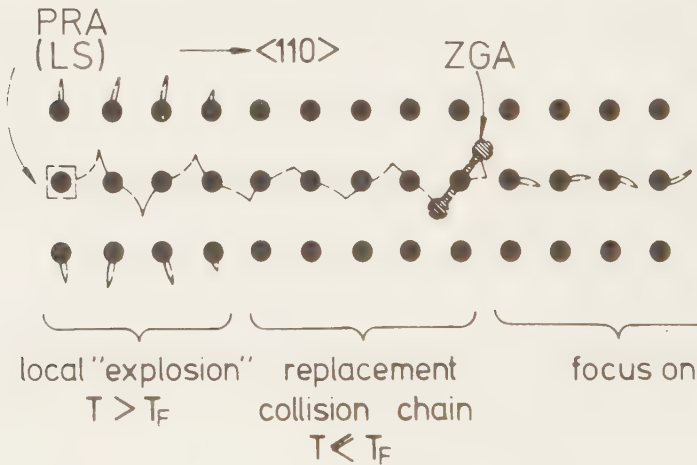


Abb. 16

Schematische Darstellung für die Produktion eines Frenkelpaares durch Energieübertrag auf ein primäres Rückstoßatom. Im Beispiel ist die Richtung des Impulsübertrages nahe der $\langle 110 \rangle$ -Richtung im fcc-Gitter.

Die elastischen Verzerrungsfelder um LS und ZGA führen zur spontanen Rekombination, wenn der Abstand dieser beiden Punktdefekte kleiner als ein Mindestabstand $r_{\min}$ ist, der üblicherweise einige wenige Gitterkonstanten beträgt und strenggenommen richtungsabhängig ist. Die minimale über die Richtung gemittelte Verlagerungsenergie zur Erzeugung eines stabilen Frenkeldefektes beträgt zwischen 25 eV für Blei und 65 eV für Wolfram⁷¹⁾.

Die durch LS und ZGA verursachten Abweichungen von der strengen Gitterperiodizität führen zu einem zusätzlichen elektrischen Widerstand, der überraschenderweise vom Agglomerationszustand der Punktdefekte weitgehend unabhängig ist. Die Messung des spezifischen Restwiderstandes bei tiefer Temperatur bietet somit ein bequemes Mittel, Frenkeldefektkonzentrationen zu bestimmen. Für Kupfer beträgt die Zunahme des spezifischen Restwiderstandes pro Atomprozent Frenkeldefekte $2.0 \mu\Omega\text{cm/at \% FD}$ ¹³⁾. Für Blei wurde in dieser Arbeit ein Wert von $13.5 \mu\Omega\text{cm/at \% FD}$ verwendet, der aus dem für Leerstellen gemessenen Wert von $5.85 \mu\Omega\text{cm/at \% LS}$ abgeschätzt wurde⁴⁴⁾. Bei isochroner Erholung nach Tieftemperaturbestrahlung mit Elektronen beobachtet man für fcc-Metalle das in Abb. 17 am Beispiel Kupfer dargestellte typische Erholungsverhalten des spezifischen Widerstandes. Es sind deutlich drei verschiedene Bereiche zu erkennen⁷³⁾. In der sog. Erholungsstufe I resultieren die Unterstufen $I_A - I_C$ aus der korrelierten Rekombination naher Frenkelpaare. Dies sind Frenkelpaare, bei denen das ZGA sich so nahe an einer LS befindet, daß eine nennenswerte attraktive Wechselwirkung vorhanden ist und nur eine reduzierte Aktivierungsenergie benötigt wird. Die Unterstufen I_D und I_E werden freier Wanderung von ZGA zugeordnet, wobei I_E nur bei sehr kleinen Defektkonzentrationen auftritt, solange der mittlere Abstand eines ZGA zur eigenen Leerstelle merklich kleiner ist als zu einer anderen Leerstelle. Bei dieser freien Wanderung von ZGA treten drei prinzipiell verschiedene Prozesse auf: Rekombination mit Leerstellen, Agglomeration mit anderen ZGA und Anlagerung an Verunreinigungsatomen. Dementsprechend überleben nach Stufe I nur ZGA-Agglomerate, ZGA-Impurity-Komplexe und Einzel-Leerstellen. Mit Erholungsstufe II wird ein Temperaturbereich bezeichnet, in dem häufig eine relativ gleichförmige geringe Abnahme des Widerstandes beobachtet wird, die der Wanderung von sehr kleinen ZGA-Agglomeraten und der Reorientierung von größeren ZGA-Agglomeraten zugeordnet wird.

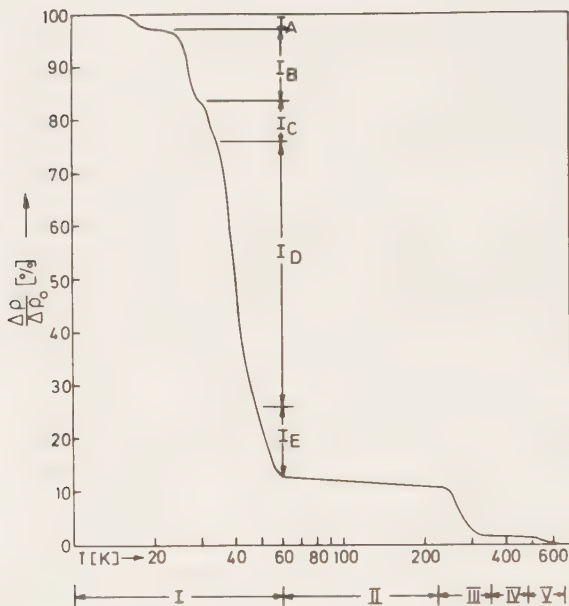


Abb. 17

Schematische isochrone Erholungskurve von Kupfer nach Elektronenbestrahlung bei 4,7 K (nach Ref. 72)

In der wiederum deutlich ausgeprägten Erholungsstufe III werden Einzel-LS frei beweglich, rekombinieren an ZGA-Agglomeraten oder formen ihrerseits unbewegliche LS-Agglomerate. Bei sehr hoch bestrahlten Proben sind die in Abb. 17 nur sehr schwach vertretenen Erholungsstufen IV und V stärker ausgeprägt. Die in Stufe V beobachtete Widerstandserholung wird einer thermischen Dissoziation von Leerstellenagglomeraten mit anschließender Rekombination an den ZGA-Agglomeraten zugeordnet. Die relativen Höhen der Erholungsstufen hängen stark ab von der lokalen Defektstruktur (Projektil und mittlere übertragene Energie) und von der Defektkonzentration vor Beginn des Erholungsprogramms. Außerdem werden sie von Imperfektionen des Kristalls (z.B. Verunreinigungen) durch Trapping-Effekte beeinflusst.

Dieses typische Erholungsverhalten der fcc-Metalle (Ausnahme: Gold) resultiert aus den in den vorangegangenen Abschnitten geschilderten Defektkonfigurationen und deren Dynamik. Wie die Abb. 18 zeigt, entspricht auch Blei ¹⁶⁾ voll den hier geschilderten Vorstellungen, mit der Besonderheit, daß die Erholungsstufe I bereits im Temperaturbereich von 2 K - 5 K liegt. Die Aktivierungsenergie für freie Wanderung von ZGAen beträgt demnach nur etwa 0.01 eV.

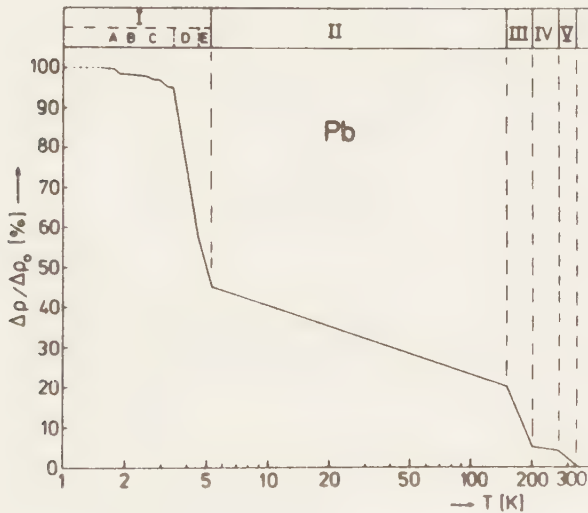


Abb. 18

Schematisches Erholungsverhalten von Blei nach Elektronenbestrahlung bei 1.5 K

Aus der Analogie des Erholungsverhaltens von Blei und Kupfer kann der Schluß gezogen werden, daß das in den vorangehenden Abschnitten geschilderte dynamische Verhalten von ZGAen und ZGA-Agglomeraten, das von Seiten der Theorie mit Potentialen, die an Kupfer angepaßt waren, berechnet wurde, auch für Blei gültig ist.

4. Struktur des Strahlenschadens nach Tieftemperaturbestrahlung mit 10 MeV und 25 MeV Sauerstoffionen

Bei Bestrahlung mit Sauerstoffionen der Energie 10 MeV (25 MeV; im folgenden werden Werte, die sich auf die Energie 25 MeV beziehen, in Klammern angegeben) kommt es aufgrund der Coulombwechselwirkung zwischen den Kernen in Abhängigkeit vom Stoßparameter sowohl zu sehr kleinen Energieüberträgen auf Targetatome, vergleichbar der Elektronenbestrahlung, als auch zu sehr großen Energieüberträgen. Elektronische Prozesse, die bei der Bestrahlung von Isolatoren und Halbleitern weitreichende Konsequenzen haben, bis hin zur sog. Coulombexplosion von Bereichen, in denen zunächst positiv geladene Atomrümpfe zurückbleiben, spielen bei Metallen keine Rolle. Der maximale Energieübertrag T_m beim zentralen Stoß beträgt

$$T_m = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} \cdot E_1 = 2.7 \text{ MeV} \quad (6.7 \text{ MeV}) \quad (1)$$

wobei M_1 und M_2 die Masse von Projektil und Targetatom und E_1 die Projektilenergie ist.

Für den Wirkungsquerschnitt für die übertragene Energie T gilt die Beziehung

$$\frac{d\sigma(T)}{dT} = \frac{Z_1^2 Z_2^2 e^4}{16\pi\epsilon_0^2} \cdot \frac{M_1}{M_2} \cdot \frac{1}{E_1} \cdot \frac{1}{T^2} \quad (2)$$

Bei bekannter minimaler (gemittelter) Verlagerungsenergie E_d des Targetmaterials kann daraus die mittlere Energie von verlagerten Atomen ($T \geq E_d$) berechnet werden:

$$\begin{aligned} \overline{T}_{>E_d} &= \int_{E_d}^{T_m} \frac{d\sigma(T)}{dT} T dT \bigg/ \int_{E_d}^{T_m} \frac{d\sigma(T)}{dT} dT = \\ &= \frac{T_m \cdot E_d}{T_m - E_d} \ln(T_m/E_d) \approx E_d \ln(T_m/E_d) = \\ &= 290 \text{ eV} \quad (312 \text{ eV}). \end{aligned} \quad (3)$$

Hierbei ist verwendet worden $E_d = 25 \text{ eV}$ ⁷¹⁾.

Die mittlere übertragene Energie ist somit um etwa eine Größenordnung größer als die mittlere Verlagerungsenergie. Dies hat zur Folge, daß die durch das Projektil rückgestoßenen Targetatome mehr als nur ein Frenkelpaar erzeugen können. Geht man davon aus, daß ein großer Teil der Energie in elastischen Stößen dissipiert wird ($\approx 60\%$), die nicht zu Frenkeldefekten führen, erhält man für die mittlere Anzahl verlagerter Atome pro primäres Rückstoßatom

$$\bar{\nu} = 0.4 \bar{T}_{>E_d} / E_d = 4.6 \quad (4).$$

Gemäß der Verteilung der übertragenen Energie sind jedoch auch große Abweichungen von diesem durchschnittlichen Wert zu erwarten. Bei Bestrahlung weit unterhalb Stufe I erhält man deshalb als Defektstruktur ein breites Spektrum, beginnend beim Einzel-ZGA bis zu ausgedehnten Verlagerungskaskaden mit hoher Defektkonzentration und deshalb teilweiser Agglomeration von ZGAen. Die Verlagerungskaskaden können dabei aufgrund von Ersetzungsstoßfolgen relativ weite Ausläufer haben.

Bezogen auf die Aktivierungsenergie für freie Wanderung ist im Falle der LS die elastische Wechselwirkung sehr viel kleiner, so daß diese - auch wenn sie nahe beieinander gebildet werden - nicht agglomerieren, sondern fast ausschließlich als Einzel-LS vorliegen. Ein Maß für die auch bei Ionenbestrahlung gebildeten Einzel-ZGA liefert die Höhe der Erholungsstufe I, da in diesem Temperaturbereich nur Einzel-ZGA wandern und mit LS rekombinieren können. Solche Messungen wurden von der Erlanger Gruppe ⁴⁸⁾ an Kupfer nach Bestrahlung mit 25 MeV Sauerstoffionen bei 20 K (unterhalb Stufe I) durchgeführt. Das beobachtete Erholungsverhalten entspricht vollkommen dem zuvor geschilderten Modell. Abb. 19 zeigt den Bruchteil der Defekte f_I , die Erholungsstufe I überleben, in Abhängigkeit von der zunächst durch Bestrahlung erzeugten Restwiderstandsänderung $\Delta\rho$ im Vergleich mit einer Reihe verschiedener Projektile. Die Darstellung zeigt, daß bei niedrigen Dosen etwa die Hälfte der ZGA als Einzel-ZGA vorliegt. Dieser Anteil sinkt bei den höchsten erreichten Defektkonzentrationen, die gleichzeitig die höchsten in der Literatur berichteten sind, auf etwa 1/6 ab. Der größte Teil der nach Stufe I noch vorhandenen ZGA liegt jedoch sicher in Form relativ kleiner Agglomerate vor.

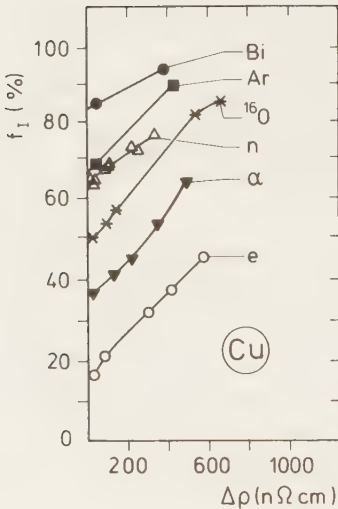


Abb. 19

Bruchteil der in Kupfer nach Erholungsstufe I noch vorhandenen Defekte als Funktion der bestrahlungsinduzierten Restwiderstandsänderung für verschiedene Projektile (nach Ref. 48)

Abgesehen von dem bisher betrachteten besteht ein weiterer Unterschied zwischen Elektronenbestrahlung und Ionenbestrahlung in dem Energiebetrag, der durch elastische Prozesse auf das Gitter übertragen wird. Dieser beträgt bei Bestrahlung mit Sauerstoffionen der Energie 10 MeV (25 MeV) durchschnittlich 170 eV (185 eV) pro primär rückgestoßenes Targetatom. Man muß sich deshalb vorstellen, daß innerhalb einer kurzen Zeitspanne unmittelbar nach dem Stoß ($\approx 10^{-10}$ s) im Bereich einer Verlagerungskaskade und deren Umgebung beträchtliche Gitterschwingungen angeregt sind. Demgegenüber ergaben Computersimulationen, daß bereits nach 10^{-13} - 10^{-12} Sekunden die Verlagerungskaskade relaxiert ist, d.h. die kinetische Energie aller Atome durch Stöße unter die Verlagerungsenergie E_d abgesunken ist. Die ursprüngliche gebildete Defektstruktur kann demnach durch die vergleichsweise sehr viel länger andauernden Gitterschwingungen, entsprechend einer erhöhten lokalen Temperatur, verändert werden. Insbesondere werden dadurch die ZGA durch sog. unterschwellige Stöße, die ihrerseits nicht in der Lage sind, neue Defekte zu erzeugen, beweglich. Experimentell wurde dies durch unmittelbar aufeinanderfolgende Bestrahlungen von Kupfer bei 6 K, also weit unterhalb Stufe I, mit 150 keV Protonen und 400 keV Kupferionen nachgewiesen (siehe Abb. 20). Während bei der Bestrahlung mit Protonen fast nur isolierte Frenkeldefekte und fast keine

Verlagerungskaskaden entstehen, erzeugt das Projektil Kupfer weitgehend Kaskaden mit großen deponierten Energieüberträgen und damit beträchtlichen Gitterschwingungen. Die dadurch ermöglichte Wanderung und Rekombination von Defekten, im wesentlichen wohl Rekombination an ZGAen und LSn, überwiegt zunächst sogar die durch die Kupferbestrahlung verursachte Produktion zusätzlicher Defekte. Dies wird in Abb. 20 überzeugend demonstriert durch die zu Beginn der Bestrahlung mit Kupfer beobachtete Widerstandsabnahme.

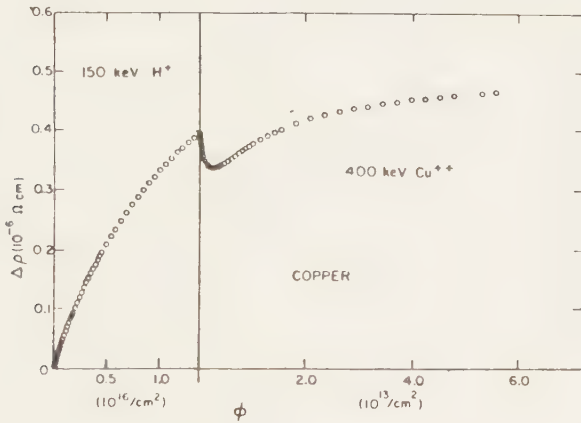


Abb. 20

Widerstandsänderung von Kupfer als Funktion der Bestrahlungsdosis für aufeinanderfolgende Bestrahlung mit 150 keV Protonen und 400 keV Kupferionen (nach Ref. 74)

Noch größere Bedeutung kommt solchen Prozessen zu, wenn wie im Falle von Blei die Aktivierungsenergie für die Wanderung von ZGAen sehr klein ist. Man muß in diesem Fall davon ausgehen, daß die meisten zunächst gebildeten ZGA während der Relaxation des sie umgebenden Gitters genügend Sprünge vollführen können, um entweder mit einer LS zu rekombinieren oder mit anderen ZGAen kleine und damit unbewegliche Agglomerate zu bilden. Eine Abschätzung für den mittleren Abstand zwischen zwei durch ein Projektil rückgestoßene Targetatome und damit für den Abstand der dadurch verursachten Verlagerungskaskaden ergibt:

$$\lambda = \frac{1}{\sigma_0 \cdot n} = 350 \overset{0}{\text{Å}} \quad (875 \overset{0}{\text{Å}}) \quad (5)$$

wobei σ_D der Gesamtwirkungsquerschnitt für Verlagerung und n die Dichte der Targetatome pro Volumen ist.

Nach höheren Dosen, wenn die Bereiche der Verlagerungskaskaden überlappen, werden deshalb, auch bei Bestrahlung unterhalb der Erholungsstufe I, praktisch keine Einzel-ZGA vorhanden sein.

Zusammenfassend folgt daraus: Bei den in dieser Arbeit berichteten Bestrahlungsexperimenten an Blei bestehen die Defekte aus ZGA-Agglomeraten, von denen aufgrund der niedrigen Bestrahlungstemperatur die meisten nur wenige ZGA groß sind, und statistisch verteilten Einzel-LS.

Zum Studium des Phononenspektrums von ZGA und ZGA-Agglomeraten in fcc-Metallen wäre es deshalb günstiger gewesen, ein Metall zu wählen, bei dem die Erholungsstufe I wesentlich höher liegt, wie z.B. Al, Cu oder Pt. Jedoch besitzt von allen fcc-Metallen des periodischen Systems nur Blei die außergewöhnlichen supraleitenden Eigenschaften, die es erlauben, das Phononenspektrum mittels der im nächsten Abschnitt skizzierten supraleitenden Tunnelspektroskopie in ausreichender Genauigkeit zu messen.

II. Supraleitende Tunnelspektroskopie

1. Einteilchenzustandsdichte im supraleitenden Zustand

1.1 BCS-Theorie schwach koppelnder Supraleiter

Die 1957 von Bardeen, Cooper und Schrieffer veröffentlichte mikroskopische Theorie der Supraleitung ⁷⁵⁾ (BCS-Theorie) geht aus von einer attraktiven Wechselwirkung zwischen den Leitungselektronen in der Nähe der Fermienergie E_F . Die Ursache für diese attraktive Wechselwirkung ist der Austausch virtueller Phononen zwischen den Leitungselektronen, also die Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Demnach nehmen an der Supraleitung nur die Elektronen innerhalb einer sogenannten Wechselwirkungsschale um die Fermifläche teil, für die gilt

$|E - E_F| \leq \hbar\omega_D$, da nur solche durch Emission bzw. Absorption eines Phonons einen freien Zustand erreichen können. In der BCS-Theorie wurde vereinfachend für diese Elektronen eine instantane und konstante attraktive Wechselwirkung V angenommen. Dies führt zu einer Energieabsenkung, wie Cooper vorher bereits allgemein zeigen konnte. Im Grundzustand bilden je zwei Elektronen mit entgegengesetzten Impulsen ($\underline{k}$, $-\underline{k}$) und Spins ($\uparrow\downarrow$) die sogenannten Cooperpaare, da für diese die Energieabsenkung (Kondensationsenergie) besonders groß ist. Die Anregungen aus diesem Grundzustand bestehen aus aufgebrochenen Cooperpaaren. Bezeichnet man die Energieabsenkung, die ein Elektron bei der Bildung eines Cooperpaares erfährt, mit Δ , so beträgt die Mindestenergie zur Erzeugung von Anregungen 2Δ , da beim Aufbrechen eines Cooperpaares beide Elektronen Einteilchenzustände einnehmen müssen. Eine detaillierte Rechnung liefert die in Abb. 21a) gezeigte Energie-Impuls-Relation für Einteilchenanregungen eines BCS-Supraleiters, wobei die Energielücke Δ stark übertrieben gezeichnet ist. Da stets nur Energien in der Nähe der Fermienergie eine Rolle spielen, ist es zweckmäßig, als Energieskala $\epsilon = E - E_F$ einzuführen. Für die Zustandsdichte der Einteilchenanregungen (Abb. 21b) erhält man damit

$$N_s(\epsilon) = N(\epsilon) \cdot \sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2} / \epsilon, \quad \text{für } \epsilon \geq \Delta, \quad \text{sonst } 0$$

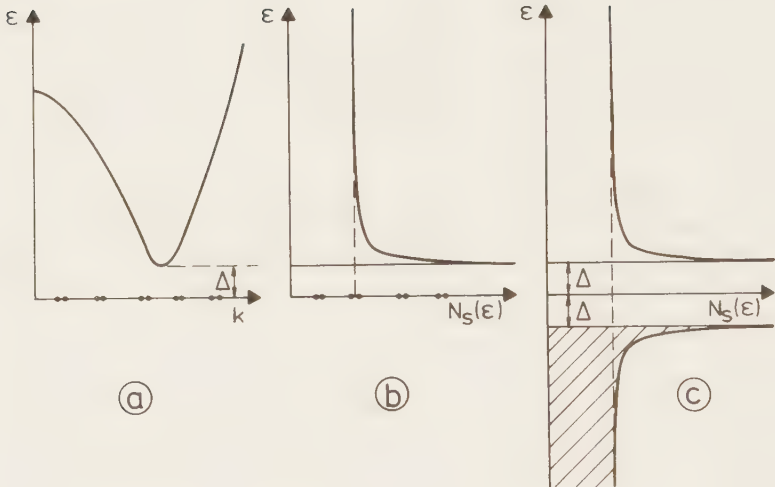


Abb. 21

a) Energie-Impuls-Relation für die Einteilchenanregungen aus dem BCS-Grundzustand;
 b) Zustandsdichte der Einteilchenanregungen (•• Cooperpaare); c) äquivalente Darstellung der Zustandsdichte für $T = 0$ (besetzte Zustände sind schraffiert).

Dabei ist $N(\epsilon = 0) = N(E = E_F)$ die elektronische Zustandsdichte des Normalleiters an der Fermienergie. Da die Energielücken in der Größenordnung 1 meV liegen und die Abweichungen der Zustandsdichte des Supraleiters von der des Normalleiters bereits bei $\epsilon = 10 \Delta$ kleiner als 0.5 % ist, kann die normalleitende Zustandsdichte für alle weiteren Überlegungen im interessierenden Energiebereich als konstant betrachtet werden. Will man in diese Darstellung auch die Cooperpaare einzeichnen, so muß das bei $\epsilon = 0$ geschehen. Eine in der Literatur häufig verwendete, äquivalente Darstellung der Einteilchenzustandsdichte eines Supraleiters zeigt Abb. 21c). In diesem Bild werden die Cooperpaare repräsentiert durch die besetzten Einteilchenzustände unterhalb der Fermienergie. Für die Zustandsdichte gilt nun:

$$N_S(\epsilon) = N(0) \frac{|\epsilon|}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2}} \quad (7)$$

Wiederum ist eine Mindestenergie von 2Δ nötig, um Anregungen zu erzeugen. Erstmals wurde die Energielücke im Anregungsspektrum eines Supraleiters durch Messungen der Infrarotabsorption 1957 von Glover und Tinkham nachgewiesen⁷⁶⁾. Eine direkte Beobachtung der temperaturabhängigen Energielücke und der Zustandsdichte ermöglichen die 1960 von Giaever eingeführten Tunnelerperimente^{37,38,77)}, der dafür 1973 den Nobelpreis für Physik erhielt. Durch diese Experimente konnte zweifelsfrei gezeigt werden, daß die BCS-Theorie trotz ihrer stark vereinfachenden Annahmen eine ausgezeichnete quantitative Beschreibung der Supraleiter mit schwacher Elektron-Phonon-Kopplung liefert. Diese sogenannten schwach koppelnden Supraleiter zeichnen sich auch dadurch aus, daß sie die von der BCS-Theorie vorhergesagte Beziehung

$$\frac{2\Delta(0)}{k_B T_C} = 3,52 \quad (8)$$

erfüllen. Hierbei ist $\Delta(0) = \Delta(T = 0)$ und T_C die supraleitende kritische Temperatur. Mit zunehmender Elektron-Phonon-Kopplung werden für diesen Quotienten größere Werte gefunden, so daß Abweichungen von 3,52 ein Maß für die Stärke der Kopplung angesehen werden können. Aufgrund der schwachen Elektron-Phonon-Wechselwirkung haben diese Supraleiter auch stets relativ niedrige Sprungtemperaturen. Typische Vertreter sind: Zn ($T_C = 0.9$ K) und Al ($T_C = 1.2 - 2$ K, je nach Reinheit).

1.2 Supraleiter mit starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung

Bei Supraleitern mit starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung treten signifikante Abweichungen von den Voraussagen der BCS-Theorie auf. Zum Beispiel findet man für Blei $\frac{2\Delta(0)}{k_B T_C} = 4,3$. Zu einer genaueren Beschreibung muß in diesem Fall die detaillierte Struktur der Elektron-Phonon-Wechselwirkung und des Phononenspektrums berücksichtigt werden. Die Grundlagen der Theorie stark koppelnder Supraleiter wurden von Eliashberg³⁴⁾ und Nambu³⁵⁾ (1960) gelegt. Ausgebaut für die supraleitende Tunnelspektroskopie wurde sie von Schrieffer, Scalapino und Wilkins. Als fundamentales Ergebnis dieser Theorie seien hier die Eliashberggleichungen für $T = 0$ genannt:

$$\Delta(\omega) = \frac{1}{Z(\omega)} \int_0^{\omega_c} d\omega' \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Delta(\omega')}{\sqrt{\omega'^2 - \Delta^2(\omega')}} \right\} \cdot \left[K_+(\omega', \omega) - \mu^* \right] \quad (9)$$

$$\left[1 - Z(\omega) \right] \cdot \omega = \int_0^{\omega_c} d\omega' \operatorname{Re} \left\{ \frac{\omega'}{\sqrt{\omega'^2 - \Delta^2(\omega')}} \right\} \cdot K_-(\omega', \omega), \quad (10)$$

wobei der Integralkern gegeben ist durch

$$K_{\pm}(\omega, \omega') = \int_0^{\infty} dv \alpha^2(v) F(v) \left[\frac{1}{\omega' + \omega + v + i\delta} + \frac{1}{\omega' - \omega + v - i\delta} \right]$$

Die Eliashberggleichungen sind gekoppelte, nichtlineare Integralgleichungen für die komplexe Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$ und komplexe Renormierungsfunktion $Z(\omega)$. Die Paar-Selbstenergiefunktion ist in dieser Schreibweise gegeben durch

$$\Phi(\omega) = \Delta(\omega) \cdot Z(\omega) \quad (10a)$$

Die Eigenschaften des Supraleiters gehen ein durch die sogenannte Eliashbergfunktion $\alpha^2(\omega)F(\omega)$, die ein Produkt aus der über die Fermifläche gemittelten Elektron-Phonon-Kopplungsfunktion $\alpha(\omega)$ und dem Phononenspektrum $F(\omega)$ ist. Außerdem geht ein die abgeschirmte Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen über das Coulombpseudopotential μ^* , das nach Morel und Anderson⁷⁷⁾ einen Wert von 0,1 - 0,15 haben sollte. Die Eliashberggleichungen behandeln die Elektron-Phonon-Wechselwirkung exakt in Störungsrechnung erster Ordnung, d.h. mit einer Genauigkeit der Größenordnung $(m_e/m_{\text{ion}})^{1/2} \approx 2 \cdot 10^{-3}$. Es gibt bisher keine gesicherten experimentellen Hinweise auf einen Supraleiter, der nicht durch sie beschrieben werden kann. Aus den Eliashberggleichungen für endliche Temperatur sind im Prinzip die supraleitenden Eigenschaften wie $\Delta(T)$, $T_c = T(\Delta(T) = 0)$, $H_{c\text{th}}$ (thermodynamisches kritisches Magnetfeld) usw. berechenbar. Dem steht entgegen, daß es praktisch in keinem Fall möglich ist, aus den bekannten Daten im normalleitenden Zustand $\alpha^2F(\omega)$ und μ^* , die als Eingangsgrößen benötigt werden, mit ausreichender Genauigkeit zu berechnen.

Die Bedeutung der supraleitenden Tunnelspektroskopie besteht nun gerade darin, daß sie es im Prinzip ermöglicht, wie im nächsten Abschnitt gezeigt werden wird, diese wichtigen Größen zu bestimmen. Die Grundlage dafür ist, daß im Falle starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung auch die in den Ausdruck für den Strom der tunnelnden Elektronen eingehende Einteilchenzustandsdichte die Strukturen der Eliashbergfunktion widerspiegelt. Diese sogenannte Tunnelzustandsdichte ³⁶⁾ ist gegeben durch den BCS-ähnlichen Ausdruck (vgl. Gl. 7).

$$N_S(\epsilon) = N(0) \cdot \operatorname{Re} \left\{ \frac{|\epsilon|}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2(\epsilon)}} \right\} \quad (11)$$

wobei jetzt anstelle der konstanten Energielücke $\Delta(0)$ die komplexe Energielückenfunktion $\Delta(\epsilon)$ enthalten ist. Eine numerische Analyse der Eliashberggleichungen zeigt die in Abb. 22 dargestellte Auswirkung eines Peaks in $\alpha^2 F(\omega)$ auf Energielückenfunktion, normierte Tunnelzustandsdichte $N_{\text{norm}} = N_S/N(0)$ und deren Ableitung $\frac{d}{d\omega} (N_S/N(0)) = \frac{dN_{\text{norm}}}{d\omega}$. Als ursächlichen physikalischen Mechanismus kann man sich vorstellen, daß bei Anregungsenergien kleiner als die typische Phononenfrequenz die Ionenrümpfe den Elektronenbewegungen so folgen können, daß sie die Elektronenladung überkompensieren und damit auf die übrigen Elektronen attraktiv wirken. Deshalb ist für $\omega < \omega_0$ der die Wechselwirkung charakterisierende Realteil von $\Delta(\omega)$ positiv. Für $\omega > \omega_0$ ist dies nicht mehr möglich. Aufgrund der Retardierung wird sogar, was in diesem einfachen Bild nicht unmittelbar einsichtig ist, die Wechselwirkung repulsiv, wodurch $\operatorname{Re} \{ \Delta(\omega) \}$ negativ wird für $\omega > \omega_0$. Die Lebensdauer der Einteilchenzustände wird beschrieben durch $\operatorname{Im} \{ \Delta(\omega) \}$. Zustände mit Energien im Bereich der typischen Phononenenergien können bei starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung besonders leicht ein Phonon emittieren und besitzen deshalb eine geringere Lebensdauer. Dieser häufig auch als Dämpfung bezeichnete Effekt führt zu einem Maximum in $\operatorname{Im} \{ \Delta(\omega) \}$ bei $\hbar\omega_0 + \Delta_0$.

Entwickelt man Gleichung 11 für $|\Delta(\epsilon)|^2 \ll \epsilon^2$, so erhält man

$$\frac{N_S(\epsilon)}{N(0)} \approx 1 + \frac{\Delta_1^2(\epsilon) - \Delta_2^2(\epsilon)}{2\epsilon^2} \quad (12)$$

wobei Δ_1 und Δ_2 Realteil bzw. Imaginärteil von $\Delta(\omega)$ sind.

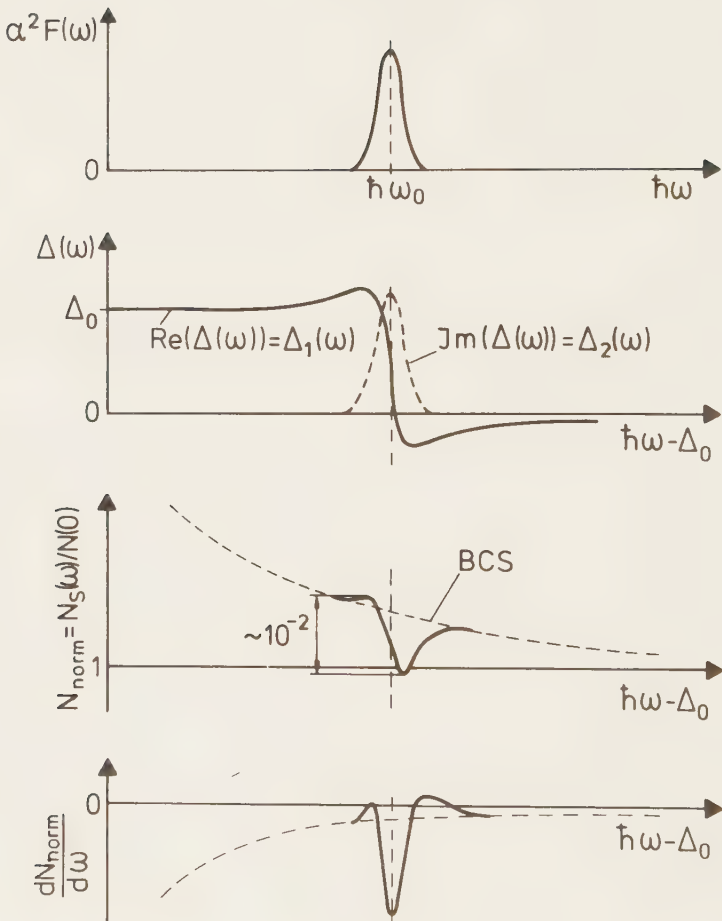


Abb. 22

Schematische Auswirkung eines Peaks in $\alpha^2 F(\omega)$ auf Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$, normierte Tunnelzustandsdichte N_{norm} und deren Ableitung. Ein Peak in $\alpha^2 F(\omega)$ entspricht einem Minimum in $dN_{\text{norm}}/d\omega$.

Demzufolge zeigt die Tunnelzustandsdichte einen steilen Abfall vom BCS-Verhalten bei $\varepsilon = \hbar\omega_0 + \Delta_0$. Als physikalische Ursache für das Auftreten dieser Struktur kann man sich wiederum vorstellen, daß Einteilchenanregungen mit einer Energie $\varepsilon = \hbar\omega_0 + \Delta_0$ bei starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung mit nicht zu vernachlässigender Wahrscheinlichkeit unter Phononemission in einen Zustand mit $\varepsilon = \Delta_0$ übergehen, zumal die Einteilchenzustandsdichte an dieser Stelle eine Divergenz aufweist. Will man die Einteilchenanregungen dennoch weiterhin als näherungsweise unabhängige Quasiteilchen betrachten, was ja die Stärke des Quasiteilchenkonzeptes in der Festkörperphysik ist, so muß diese Übergangswahrscheinlichkeit durch eine modifizierte Zustandsdichte berücksichtigt werden. Der mathematische Formalismus hierfür sind die bereits genannten Eliashberggleichungen.

Die Größe der Abweichung der Tunnelzustandsdichte vom BCS-Verlauf ist somit ein Maß für die Stärke der Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Die größte Abweichung wurde bisher für Blei beobachtet und beträgt nur ca. 5 %. Zum Vergleich weist das im vorangehenden Abschnitt als typischer BCS-Supraleiter genannte Aluminium Abweichungen von < 0.01 % auf. Als Abschätzung für die zu erwartende Abweichung δN_s vom BCS-Verlauf kann gelten:

$$\delta N_s \propto \left(\frac{\Delta_0}{\hbar\omega_D}\right)^2 \approx \left(\frac{T_c}{\theta_D}\right)^2 \quad (13)$$

wobei θ_D die Debyetemperatur ist.

Demnach ist die Größe der Struktur die von einem Phononenpeak bei ω_0 hervorgerufen wird proportional zu $1/\omega_0^2$. Dies kann insbesondere beim Versuch hochfrequente Phononenmoden nachzuweisen zu Schwierigkeiten führen.

2. Tunnelstrom durch eine dünne isolierende Barriere

2.1 Normalleiter-Isolator-Normalleiter Tunnelkontakt

Ein Tunnelkontakt (tunnel junction) besteht aus zwei Metallen, die durch eine so dünne isolierende Schicht getrennt sind, daß die Leitungselektronen aufgrund des quantenmechanischen Tunneleffektes von der einen Seite zur anderen gelangen können. Aus experimenteller Sicht liegt das Problem bei der Herstellung eines Tunnelkontaktes in der Ausbildung der Isolatorbarriere. Die weitaus meisten Experimente wurden deshalb in den in Abb. 23 gezeigten Konfigurationen mit gekreuzten Dünnschichten durchgeführt. Dabei wird der zuerst aufgedampfte Film oxidiert, bevor quer dazu der zweite aufgedampft wird. Ist die Oxidschicht isolierend und gelingt es, sie ohne Löcher in der geeigneten Dicke zu erzeugen, so bildet sie die gewünschte Tunnelbarriere. Betrachtet man die Tunnelbarriere in einem eindimensionalen Problem als Potentialwall der Höhe V_0 und der Dicke d , so ist die Wahrscheinlichkeit W für ein Elektron der Energie $E \ll V_0$ den Potentialwall zu durchtunneln gegeben durch:

$$W = 16 \frac{E(V - E)}{V^2} \exp \left(- \frac{2d}{\hbar} \sqrt{2m_e (V - E)} \right) \quad (14)$$

Setzt man darin als typische Werte $d \approx 20 - 50 \text{ \AA}$ und $V - E \approx 3 - 5 \text{ eV}$ ein, so folgt daraus, daß eine Variation der Barrierendicke von nur $1 \text{ \AA}$ eine Änderung der Tunnelwahrscheinlichkeit von etwa einer Größenordnung zur Folge hat. Dadurch ist es relativ schwierig, Tunnelkontakte mit reproduzierbaren Widerständen herzustellen.

Beim Kontakt zweier Metalle, repräsentiert durch Abb. 24, ist die Wahrscheinlichkeit für ein Elektron der Energie ϵ von Metall A zu Metall B zu tunneln, gegeben durch:

$$W_{AB}(\epsilon) = \frac{2\pi}{\hbar} \left| T_{AB}(\epsilon) \right|^2 \cdot N_B^f(\epsilon) \quad (\text{"golden rule"}) \quad (15)$$

wobei T_{AB} das Matrixelement für den Übergang von A nach B und $N_B^f(\epsilon)$ die Dichte der freien Zustände im Metall B ist. Die Zahl der Elektronen mit Energie ϵ , die pro Zeit von A nach B tunneln, ist demnach:

$$Z_{AB}(\epsilon) = W_{AB}(\epsilon) N_A^b(\epsilon) = \frac{2\pi}{\hbar} \left| T_{AB}(\epsilon) \right|^2 N_A^b(\epsilon) \cdot N_B^f(\epsilon) \quad (16)$$

wobei entsprechend $N_A^b(\epsilon)$ die Dichte der besetzten Zustände der Energie ϵ in Metall A ist.

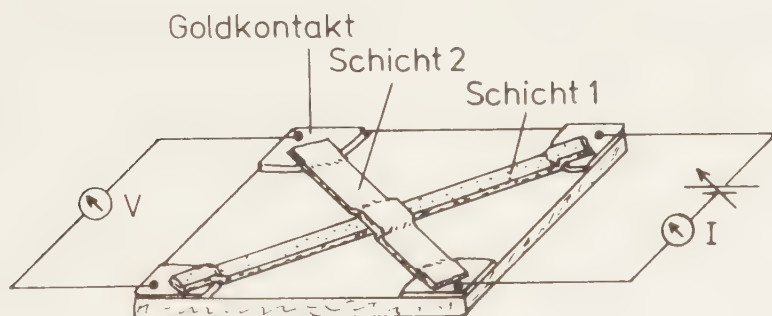


Abb. 23

Tunnelkontakt aus zwei aufgedampften Metallfilmen. Die Metalle sind durch eine dünne Oxidschicht getrennt.

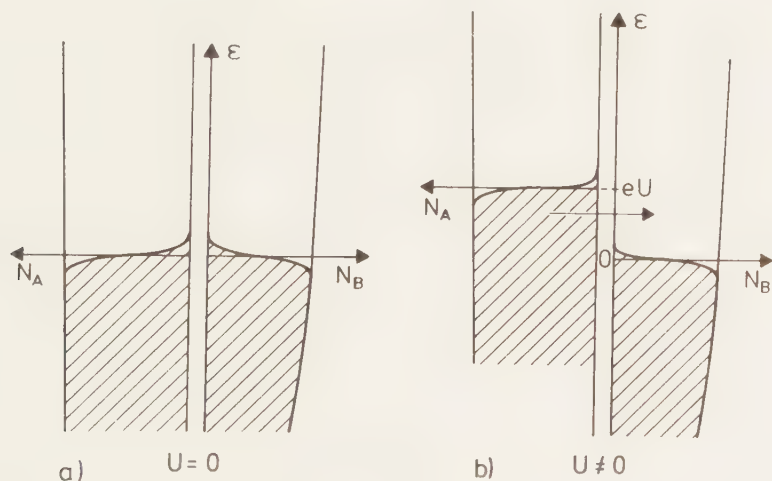


Abb. 24

Tunnelkontakt zwischen zwei Metallen im normalleitenden Zustand für $U = 0$ (a) und $U \neq 0$ (b).

Entsprechend ist die Zahl der Elektronen, die von B nach A tunneln:

$$Z_{BA}(\epsilon) = \frac{2\pi}{\hbar} |T_{BA}(\epsilon)|^2 N_A^f(\epsilon) \cdot N_B^b(\epsilon) \quad (17)$$

Legt man an den Kontakt die Spannung U an, so verschieben sich die Fermi-energien (genau genommen die chemischen Potentiale) um den Betrag eU , so daß Zustände mit der Energie ϵ auf der rechten Seite nun Zuständen mit der Energie $\epsilon - eU$ auf der linken Seite gegenüberliegen (Abb. 24b). Den Ausdruck für den Strom $I(U)$ erhält man, wenn man dies in den Gleichungen 16 und 17 berücksichtigt und ihre Differenz integriert:

$$I(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} (|T_{AB}(\epsilon)|^2 N_A^b(\epsilon - eU) N_B^f(\epsilon) - |T_{BA}(\epsilon)|^2 N_A^f(\epsilon - eU) N_B^b(\epsilon)) d\epsilon \quad (18)$$

Für kleine angelegte Spannungen $eU \ll V$ kann das Übergangsmatrixelement als unabhängig von der Richtung betrachtet werden. Führt man explizit die Fermi-verteilung $f(\epsilon)$ ein, so ergibt sich:

$$I_{NN}(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} |T(\epsilon)|^2 (N_A(\epsilon - eU) f(\epsilon - eU) N_B(\epsilon) (1 - f(\epsilon)) - N_A(\epsilon - eU) (1 - f(\epsilon - eU)) N_B(\epsilon) f(\epsilon)) d\epsilon =$$

$$\frac{2\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} |T(\epsilon)|^2 N_A(\epsilon - eU) N_B(\epsilon) (f(\epsilon - eU) - f(\epsilon)) d\epsilon \quad (19)$$

Der im Integranden auftretende Faktor $(f(\epsilon - eU) - f(\epsilon))$ ist aber nur im Energieintervall $[-0(kT), eU + 0(kT)]$ von Null verschieden, wobei $0(kT)$ die Größenordnung einige kT hat. Für $eU \ll E_F$ können in diesem Bereich N_A , N_B und $|T|^2$ als konstant angenommen werden. Daraus folgt:

$$I_{NN}(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} |T(0)|^2 N_A(0) N_B(0) \int_{-\infty}^{+\infty} (f(\epsilon - eU) - f(\epsilon)) d\epsilon =$$

$$= \frac{2\pi e^2}{\hbar} |T(0)|^2 N_A(0) N_B(0) \cdot U = C_{NN} \cdot U \quad (20)$$

Für kleine Spannungen erhält man damit eine lineare Strom-Spannungs-Charakteristik, was experimentell für $\text{Al-Al}_{x,y}\text{O}_y\text{-Pb}$ Tunnelkontakte im normalleitenden Zustand bis etwa 50 meV sehr gut erfüllt ist.

Für die differentielle Leifähigkeit folgt daraus:

$$dI_{NN}(U)/dU = C_{NN} = \text{const.} \quad (21)$$

2.2 Normalleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt

Wird ein Tunnelkontakt gebildet aus einem Normalleiter und einem Supraleiter, so erhält man formal dieselben Gleichungen, wobei nun für $N_B(\epsilon)$ einzusetzen ist $N_B(\epsilon) = N_B(0) \cdot \text{Re} \left\{ \frac{|\epsilon|}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta_B^2(\epsilon)}} \right\}$ für $|\epsilon| > \Delta_0$ und $N_B(\epsilon) = 0$ für $|\epsilon| \leq \Delta_0$. Der Ausdruck für den Tunnelstrom (Gl. 19) lautet damit:

$$I_{NS}(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} |T(0)|^2 N_A(0) N_B(0) \int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \left\{ \frac{\epsilon}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta_B^2(\epsilon)}} \right\} f'(\epsilon - eU) f'(\epsilon) d\epsilon \quad (22)$$

Dies ist in Abb. 25a dargestellt für einen Fall, der etwa einem $\text{Al-Al}_{x,y}\text{O}_y\text{-Pb}$ Tunnelkontakt bei 4,2 K entspricht. Die Abb. 25b zeigt den Tunnelstrom als Funktion der angelegten Spannung für verschiedene Temperaturen. Für $T \rightarrow 0$ fließt mit zunehmender Spannung zunächst kein Strom bis $eU = \Delta_0$ erreicht ist. Dort setzt dann der Strom wegen der Divergenz in der Zustandsdichte des Supraleiters mit vertikaler Tangente ein. Für $eU \gg \Delta_0$ nähert er sich asymptotisch dem des Normalleiter-Normalleiterkontaktes. Aus Gl. 22 folgt für einen BCS-Supraleiter ($\Delta_B(\epsilon) = \Delta_{B0}$) bei $T = 0$:

$$I_{NS}(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} |T(0)|^2 N_A(0) N_B(0) \sqrt{(eU)^2 - \Delta_{B0}^2} \quad (23)$$

und damit

$$dI_{NS}(U)/dU = C_{NN} \frac{|eU|}{\sqrt{(eU)^2 - \Delta_{B0}^2}} \quad (24)$$

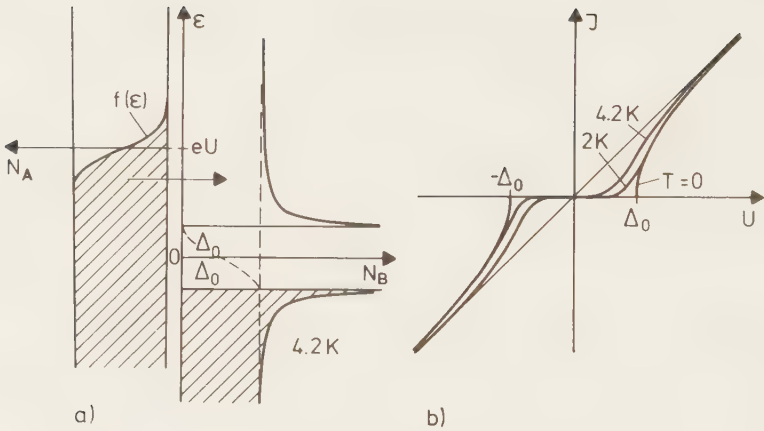


Abb. 25

- a) Normalleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt ($\text{Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Pb}$)
 b) Strom-Spannungs-Kennlinie eines Normalleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontaktes für verschiedene Temperaturen. Die dünne Linie entspricht der normalleitenden Kennlinie.

Die letzte Beziehung gilt allgemein auch für stark koppelnde Supraleiter mit nicht konstanter Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$ bei $T = 0$, da in diesem Fall in Gleichung 22 die Differenz der Fermifunktionen im Integranden gleich 1 ist für $0 \leq \varepsilon \leq eU$ und 0 außerhalb. Deshalb ist für $T = 0$:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \left\{ \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta_B^2(\varepsilon)}} \right\} (f(\varepsilon - eU) - f(\varepsilon)) d\varepsilon = \int_0^{eU} \text{Re} \left\{ \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta_B^2(\varepsilon)}} \right\} d\varepsilon \quad (25)$$

und weiterhin

$$\frac{d}{dU} \int_0^{eU} \text{Re} \left\{ \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta_B^2(\varepsilon)}} \right\} d\varepsilon = e \cdot \text{Re} \left\{ \frac{|eU|}{\sqrt{(eU)^2 - \Delta_B^2(eU)}} \right\} \quad (26)$$

Damit gilt allgemein:

$$(dI_{NS}(U)/dU) = C_{NN} \text{Re} \left\{ \frac{|eU|}{\sqrt{(eU)^2 - \Delta_B^2(eU)}} \right\} \text{ für } T = 0. \quad (27)$$

Da die normalleitende differentielle Leitfähigkeit C_{NN} jedoch im betrachteten Spannungsbereich $eU \leq \hbar \omega_D$ nicht absolut konstant ist, sondern sich im allgemeinen um einige 10^{-3} ändert, muß zum Erreichen der benötigten Genauigkeit stets sowohl im supraleitenden als auch normalleitenden Zustand dI/dU gemessen werden. Dies sollte zudem bei derselben Temperatur durch Anlegen eines überkritischen Magnetfeldes erfolgen, um eine eventuell vorhandene schwache Temperaturabhängigkeit von C_{NN} zu eliminieren. Man erhält somit aus Tunnelexperimenten unmittelbar folgende wichtige Informationen über einen Supraleiter:

1. Die Energielücke Δ_0 in der Zustandsdichte
2. Daraus den Wert $2\Delta_0/k_B T_c$ als Maß für die Stärke der Elektron-Phonon-Wechselwirkung
3. Die normierte Zustandsdichte (in der Näherung $T \rightarrow 0$)

$$\text{Re} \left\{ \frac{|eU|}{\sqrt{(eU)^2 - \Delta^2(eU)}} \right\} = \frac{dI_{NS}(U)/dU}{dI_{NN}(U)/dU} = \sigma_{\text{norm}}(U)$$

4. Die Lage von Strukturen in der Eliashbergfunktion

$$\propto {}^2F(\omega) \text{ durch Messung der zweiten Ableitung } \frac{d^2 I_{NS}(U)}{dU^2}$$

Angemerkt sei noch, daß bei diesen Betrachtungen implizit vorausgesetzt wurde, daß das Übergangsmatrixelement $|T(0)|$ sich nicht ändert beim Übergang in den supraleitenden Zustand. Als experimentelle Bestätigung dafür kann angeführt werden, daß für $eU \gg \hbar \omega_D$ gefunden wird: $dI_{NS}(U)/dU = dI_{NN}(U)/dU$.

2.3 Supraleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt

Üblicherweise werden zur Bestimmung der normierten Zustandsdichte Normalleiter-Isolator-Supraleiter Kontakte verwendet, wie sie im vorangehenden Abschnitt behandelt wurden. In dieser Arbeit jedoch wurden nur sehr kleine Änderungen des Phononenspektrums durch bestrahlungsinduzierte Gitterdefekte erwartet. Die meisten Messungen wurden deshalb bei Temperaturen durchgeführt, bei denen auch die Aluminiumelektrode supraleitend war, da dies für den Nachweis von sehr kleinen Effekten besondere Vorteile bietet. Im Falle eines Tunnelkontaktes aus zwei Supraleitern treten im Ausdruck für den Strom $I(U)$, Gl. 19, nun zwei supraleitende Zustandsdichten auf:

$$I_{SS}(U) = \frac{2\pi e}{\hbar} |T(0)|^2 N_A(0) N_B(0) \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \text{Re} \left\{ \frac{|\epsilon - eU|}{((\epsilon - eU)^2 - \Delta_A^2(\epsilon - eU))^{1/2}} \right\} \times \\ \times \text{Re} \left\{ \frac{|\epsilon|}{(\epsilon^2 - \Delta_B^2(\epsilon))^{1/2}} \right\} \cdot (f(\epsilon - eU) - f(\epsilon)) d\epsilon \quad (28)$$

Haben die beiden Supraleiter verschiedene Energielücken, wie zum Beispiel Aluminium ($\Delta_A(0) \approx 0.2 \text{ meV}$) und Blei ($\Delta_B(0) = 1.36 \text{ meV}$), so tritt für $T > 0$ ein lokales Strommaximum auf bei $eU = |\Delta_A(0) - \Delta_B(0)|$, wie man sich leicht anhand von Abb. 26 verdeutlicht, da dort den thermisch besetzten Zuständen in Supraleiter A die Divergenz in der Zustandsdichte des Supraleiters B gegenüberliegt. Mit zunehmender Spannung nimmt der Strom ab, da die Zustandsdichte in B abnimmt, bis schließlich bei $eU \geq \Delta_A(0) + \Delta_B(0)$ Elektronen aus Zuständen unterhalb der Fermienergie von A in die freien Zustände von B tunneln können. Da bei $eU = \Delta_A(0) + \Delta_B(0)$ die besetzte Divergenz der Zustandsdichte von A der freien von B gegenüberliegt, zeigt an dieser Stelle die Kennlinie einen Sprung. Aus diesem Verhalten lassen sich die Energielücken beider Supraleiter sehr genau bestimmen.

Bei der elektronischen Messung der differentiellen Leitfähigkeit mit Hilfe der Modulationstechnik werden bei Verwendung von Supraleiter-Isolator-Supraleiter Kontakten die Strukturen in der Zustandsdichte verstärkt, wie in Abb. 27 veranschaulicht wird. In dieser Abbildung ist wiederum ein Aluminium-Blei-Tunnelkontakt dargestellt bei einer Temperatur von 1.3 K. Während das Aluminium eine reine BCS-Zustandsdichte besitzt, sind in der Zustandsdichte des Blei die von den transversalen (Index T) und longitudinalen (Index L) Phononenmoden hervor-

gerufenen Strukturen schematisch eingezeichnet. Im Blei sind aufgrund der relativ großen Energielücke praktisch keine Zustände oberhalb der Fermienergie besetzt, da $(\exp(1.36 \text{ meV}/(k_B \cdot 1,3 \text{ K})) + 1)^{-1} \approx 4 \cdot 10^{-6}$ ist. Im Aluminium sind zwar Zustände oberhalb E_F besetzt, $(\exp(0.2 \text{ meV}/(k_B \cdot 1.3 \text{ K})) + 1)^{-1} \approx 0.14$, jedoch insgesamt sehr viel weniger als im Falle der Normalleitung. Dadurch wird die thermische Verschmierung der Strukturen reduziert. Zusätzlich zur Reduktion der thermischen Verschmierung tritt eine Verstärkung auf, da im supraleitenden Fall bei Spannungserhöhung die Divergenz in der Zustandsdichte des Aluminiums über die Phononenstrukturen des Blei geschoben wird. Diese beiden Tatsachen zusammen lassen bestrahlungsinduzierte Effekte leichter erkennen.

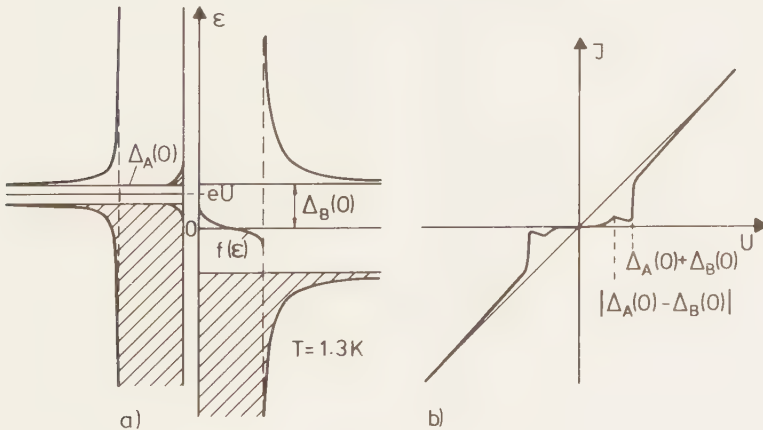


Abb. 26

a) Supraleiter-Isolator-Supraleiter Tunnelkontakt ($\text{Al}-\text{Al}_x\text{O}_y-\text{Pb}$)

b) Strom-Spannungs-Kennlinie für $T = 1,3 \text{ K}$. Die dünne Linie entspricht der normalleitenden Kennlinie.

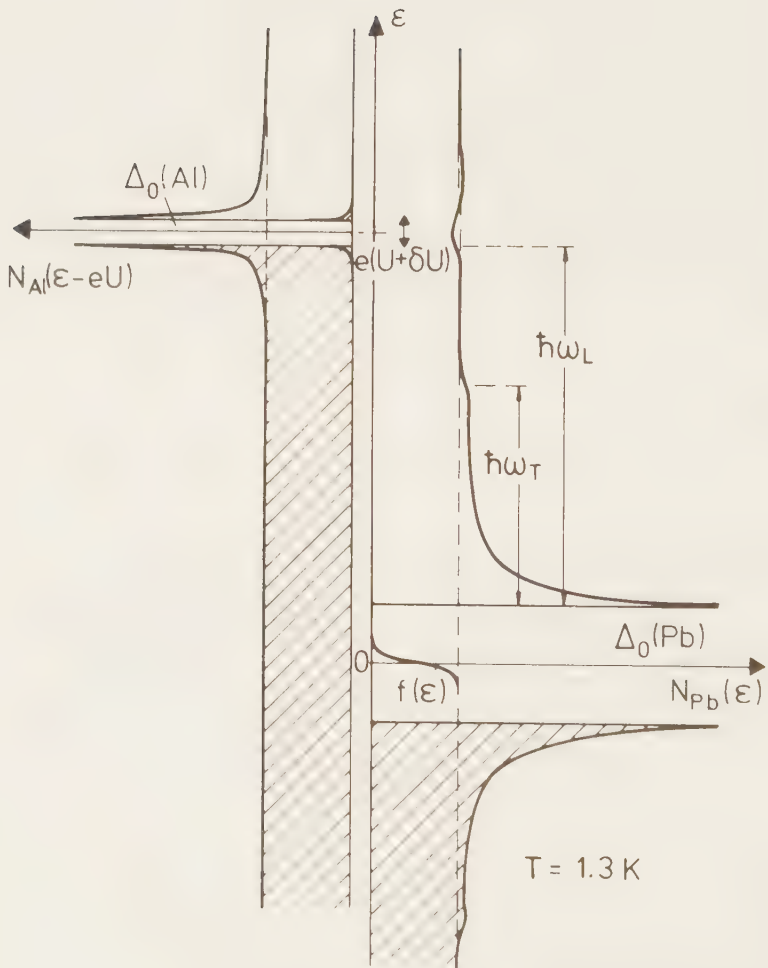


Abb. 27

Schematische Darstellung der Verstärkung des Phononenstrukturen in der differentiellen Leitfähigkeit eines stark koppelnden Supraleiters (Pb) bei Verwendung eines BCS-Supraleiters als Gegenelektrode (Al).

Allerdings ist die im Falle zweier supraleitender Elektroden gemessene differentielle Leitfähigkeit nicht unmittelbar die Tunnelzustandsdichte, die zur Berechnung der Eliashbergfunktion $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ aus den Eliashberggleichungen benötigt wird. Aber dieses ist sie genau genommen auch im Falle einer normalleitenden Gegenelektrode nur in der Näherung $T = 0$. Bei praktisch allen Messungen in der Literatur wurden jedoch die durch endliche Temperatur hervorgerufene thermische Verschmierung vernachlässigt.

In dieser Arbeit wurde, wie im Teil C ausgeführt, die normierte Tunnelzustandsdichte von Blei unter Berücksichtigung der thermisch besetzten Zustände aus der gemessenen normierten Leitfähigkeit numerisch berechnet. Als alleinige Verbreiterung beinhalten die so erhaltenen Kurven nur noch die aufgrund der Lock-in Technik nötige Spannungsmodulation von etwa 90 μV , die jedoch gegenüber der Breite der Strukturen vernachlässigt werden kann.

3. Auswertung von Tunnelexperimenten

Wie bereits im vorhergehenden Abschnitt erwähnt, können im Falle eines Tunnelkontaktes aus zwei Supraleitern mit verschiedenen Energielücken diese unmittelbar aus der Strom-Spannungs-Kennlinie bzw. deren 1. Ableitung mit großer Genauigkeit bestimmt werden. Für die Spannung des deutlich erkennbaren Strommaximums U_M und des steilen Stromanstiegs U_S (vgl. Abb. 26) gilt: $U_M = |\Delta_A - \Delta_B|/e$ und $U_S = (\Delta_A + \Delta_B)/e$. Etwas schwieriger ist dies im Falle eines Normalleiter-Supraleiter Kontaktes, da dort durch thermisch besetzte Zustände der Stromanstieg wesentlich weniger genau lokalisiert werden kann. Die hierfür beste Methode ist die Energielücke durch Anpassen einer numerisch berechneten Strom-Spannungs-Kennlinie an die gemessene zu bestimmen.

Die große Bedeutung der Tunnelspektroskopie besteht jedoch in der Berechnung von $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ und μ^* aus den Eliashberggleichungen (Gl. 9 und 10). Da dies gekoppelte komplexe Integralgleichungen sind, ist es nicht möglich, sie explizit nach $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ aufzulösen, sondern diese sogenannte "Inversion der Eliashberggleichungen" muß iterativ, numerisch erfolgen. Vorgegangen wird dabei, wie in Abb. 28 verdeutlicht.

Ausgehend von Startfunktionen für $\Delta(\omega)$ und $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ werden entsprechend den Eliashberggleichungen die Paar-Selbstenergiefunktion $\Phi(\omega)$, die Renormalisierungsfunktion $Z(\omega)$ und daraus die Energielückenfunktion $\Delta(\omega) = \Phi(\omega)/Z(\omega)$ berechnet. Dabei wird das Coulombpseudopotential so bestimmt, daß für $\Delta(\omega = 0)$ der eingegebene Wert $\Delta(0)$ erhalten wird. Dieser Vorgang wird mit der jeweils neu erhaltenen Energielückenfunktion so lange wiederholt, bis sich die so erhaltene Energielückenfunktion $\Delta^{(n+1)}(\omega)$ von der vorausgegangenen $\Delta^{(n)}(\omega)$ nicht mehr wesentlich unterscheidet ($\approx 10^{-3}$). Dieses Vorgehen entspricht der iterativen Lösung des Fixpunktsatzes $x^{(n+1)} = f(x^{(n)})$. Ist dieses erreicht, wird die Tunnelzustandsdichte $N_{\text{ber}}(\omega) = \text{Re} \left\{ \frac{|\omega|}{(\omega^2 - \Delta^2(\omega))^{1/2}} \right\}$ berechnet und mit der experimentellen Zustandsdichte $N_{\text{norm}} = N_S(\omega)/N(0)$ verglichen. Ebenfalls berechnet wird die Funktionalableitung $\delta N_{\text{ber}}(\omega)/\delta \alpha^2 F(\omega)$ und daraus als Modifikation von $\alpha^2(\omega)F(\omega)$

$$\delta^{(n)} \alpha^2(\omega)F(\omega) = \int \left[\frac{\delta N_{\text{ber}}(\omega')}{\delta \alpha^2(\omega')F(\omega')} \right]^{-1} \cdot (N_{\text{norm}}(\omega') - N_{\text{ber}}^{(n)}(\omega')) d\omega' \quad (29)$$

bestimmt. Daraus erhält man als neue Eliashbergfunktion:

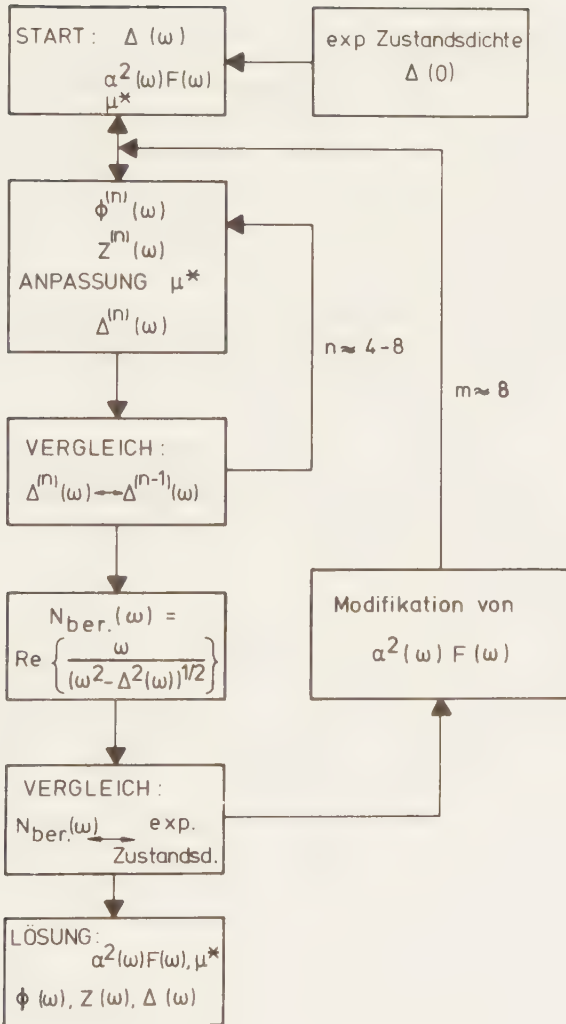


Abb. 28

Schema des Verfahrens zur iterativen Berechnung von $\alpha^2(w)F(w)$, μ^* , $\phi(w)$, $Z(w)$ und $\Delta(w)$.

$$(\alpha^2(\omega)F(\omega))^{(n+1)} = (\alpha^2(\omega)F(\omega))^{(n)} + \delta^n \alpha^2(\omega)F(\omega) \quad (30)$$

Dieser Vorgang wird so oft wiederholt, bis eine Eliashbergfunktion gefunden wurde, die die gemessene Zustandsdichte reproduziert. Diese Lösung der Eliashberggleichungen liefert also nebenbei auch noch die Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$, die Paar-Selbstenergiefunktion $\Phi(\omega)$ und die Renormalisierungsfunktion im supraleitenden Zustand $Z_S(\omega)$. Setzt man in die Eliashberggleichung $\Delta(\omega) = 0$ ein, so erhält man auch noch die Renormalisierungsfunktion im normalleitenden Zustand $Z_n(\omega)$. Die Größe von μ^* , insbesondere Abweichungen vom theoretisch erwarteten Wert 0.10 - 0.15, lassen auf das Wirken zusätzlicher Elektron-Elektron-Wechselwirkungsmechanismen schließen. Als Beispiel sei genannt, daß für das Übergangsmetall Vanadium aus theoretischer Sicht wegen Paramagnoneneffekten $\mu^* = 0.25$ erwartet wird.

Mit der Kenntnis von $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ sind auch noch weitere Parameter, die zur Charakterisierung und quantitativen Beschreibung von Supraleitern herangezogen werden, leicht erhältlich. So zum Beispiel der Elektron-Phonon-Kopplungsparameter λ , der definiert ist durch:

$$\lambda = 2 \int_0^{\omega_D} \frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} d\omega = \frac{N(0) \langle I^2 \rangle}{M \langle \omega^2 \rangle} \quad (31)$$

Gleichung 31 wurde von McMillan⁷⁸⁾ angegeben. Hierbei ist $N(0)$, wie bereits vorher eingeführt, die elektronische Zustandsdichte an der Fermikante, $\langle I^2 \rangle$ das über die Fermifläche gemittelte Elektron-Phonon-Matrixelement, M die Ionenmasse und $\langle \omega^2 \rangle$ die mittlere quadratische Phononenenergie. Das heißt, der Nenner ist im wesentlichen gleich der "Federkonstanten" für Auslenkungen der Atomrümpfe. Damit kann T_c näherungsweise nach der ebenfalls von McMillan angegebenen, sehr erfolgreichen Näherungsformel berechnet werden:

$$k_B T_c = \frac{\hbar \langle \omega \rangle}{1.2} \exp \left(- \frac{1.04 (1 + \lambda)}{\lambda - \mu^* (1 + 0.62 \lambda)} \right) \quad (32)$$

Die Fülle der Informationen, die man prinzipiell aus einem gelungenen Tunnelexperiment über einen Supraleiter und auch über dessen normalleitende Eigenschaften erhält, demonstriert eindrucksvoll die Bedeutung dieser Methode. Zugleich konnten dadurch die Eliashberggleichungen und damit die Theorie der Supraleiter mit starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung getestet und überzeugend bewiesen werden³⁹⁾.

Der allgemeinen Anwendung der supraleitenden Tunnelspektroskopie steht allerdings das Problem entgegen, Tunnelkontakte mit der erforderlichen Qualität herzustellen. Dies betrifft nicht nur die Erzeugung einer Tunnelbarriere geeigneter Dicke, sondern auch die Eigenschaften der supraleitenden Elektrode, da die tunnelnden Elektronen im wesentlichen Information über eine barrierennahe Schicht der Dicke der Kohärenzlänge tragen. Diese ist häufig für die besonders interessanten Supraleiter, solche mit hohen supraleitenden kritischen Temperaturen oder hohen kritischen Magnetfeldern, sehr klein, etwa in der Größenordnung $40 \text{ \AA} - 100 \text{ \AA}$. Dazu kommt noch, daß eben diese Materialien meist nur in komplizierten Präparationsprozessen hergestellt werden können, so daß damit die Homogenität der Zusammensetzung und damit auch der lokalen supraleitenden Eigenschaften bis unmittelbar an die Oberfläche oft nicht erreicht wird.

In dieser Hinsicht bietet Blei optimale Voraussetzungen. In Bezug auf die Untersuchung des dynamischen Verhaltens von Punktdefekten in fcc-Metallen mittels der supraleitenden Tunnelspektroskopie ist es das einzig aussichtsreiche Element.

C. EXPERIMENTELLER TEIL

I. Bestrahlungsbedingungen und Probeneigenschaften

1. Überblick über die Bestrahlungsexperimente

Abgesehen von umfangreichen Voruntersuchungen und Testmessungen wurden drei Bestrahlungsexperimente an der Tieftemperaturbestrahlungsanlage des Erlanger Tandembeschleunigers durchgeführt. Die Bestrahlungsanlage (Abb. 29) besteht aus zwei separaten Helium-Kryostaten - einem äußeren Badkryostaten mit supra-leitender Magnetspule und dem eigentlichen, auswechselbaren Probenkryostaten. Die Details der Anlage wurden von Söldner⁷⁹⁾ ausführlich beschrieben. Zur Verbesserung der Probenkühlung bei Bestrahlung und der Temperaturstabilität bei gleichzeitig niedrigerer Endtemperatur (1,2 K) wurde für das dritte Bestrahlungsexperiment eigens ein neuer Probenkryostat (Badkryostat) konstruiert. Damit konnten Temperaturen von etwa 1,3 K problemlos über einen Zeitraum von etwa 6 Stunden gehalten werden. Bei rechtzeitigem Nachfüllen von flüssigem Helium, angezeigt durch Temperaturmeßwiderstände im Kryostaten, kann leicht erreicht werden, daß die Temperatur des eigentlichen Probenkopfes auch während des Nachfüllens nicht über etwa 2,3 K ansteigt, da sich oberhalb der Temperatur, bei der Helium superfluid wird (2,19 K), eine sehr stabile Temperaturschichtung im flüssigen Helium ausbildet. Dieser Probenkryostat wurde inzwischen ausführlich von Steudtner⁸⁰⁾ beschrieben. Er ermöglichte es, bei Strahlströmen von ca. 10 nA bei 10 MeV O^{3+} Ionen die Bestrahlungstemperatur unter 2 K zu halten. Gemessen wurde diese Temperatur über die Temperaturabhängigkeit der Strom-Spannungs-Charakteristik der Tunnelkontakte. Demgegenüber erlaubte der bei den beiden ersten Strahlzeiten verwendete Probenkryostat (Verdampferkryostat, Fa. Siemens) nur Bestrahlungstemperaturen von ca. 7 K und längere Messungen (ca. 30 Minuten) bei 2 K. In diesen beiden Fällen betrugen die Strahlströme bis zu 25 nA 25 MeV O^{4+} Ionen. Das dritte Bestrahlungsexperiment unterscheidet sich von den beiden vorausgehenden auch hinsichtlich der Messung: Die Daten wurden parallel zum X-Y-Schreiber mit Hilfe von Camac und Forcam⁸¹⁾ in einem Computer (PDP 11/40) gespeichert. Dadurch war es möglich, ohne zusätzliche Fehlerquellen weitere Datenreduktion vorzunehmen. Insbesondere war dies eine Voraussetzung zur Berechnung von $\alpha^2 F(\omega)$ aus den gemessenen differentiellen Leitfähigkeiten mit Hilfe des McMillan-Programms.

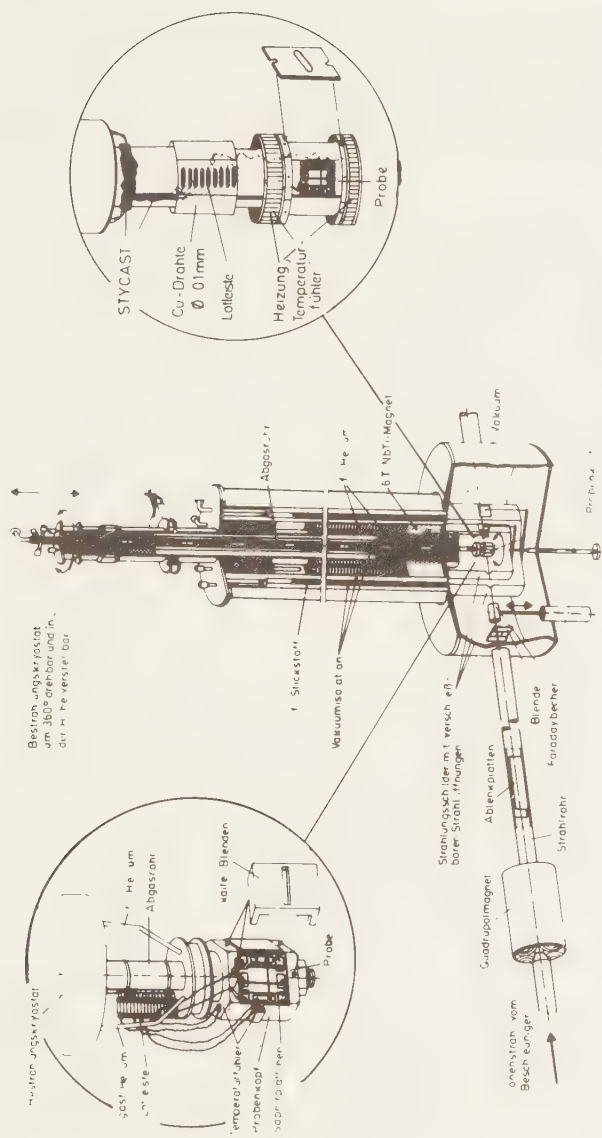


Abb. 29

Scematische Darstellung der Tieftemperaturbestrahlungsanlage am Erlanger Tandem-Beschleuniger

Eine Übersicht über die Bestrahlungsexperimente gibt Tabelle 3. Die Gesamtdicke der Tunnelkontakte war stets kleiner als 1 μm , während die mittlere Reichweite der verwendeten Ionen stets größer als 4 μm war. Demzufolge wurden in die Proben keine Projektilionen implantiert.

Tabelle 3

Obersicht über die Bestrahlungsexperimente

Experiment	Bestrahlungs- temperatur	Meß- temperatur	Projektil	Strahl- strom- stärke	on-Line Daten- aufnahme	Lot
I	ca. 7 K	ca. 2 K	25 MeV O^{4+}	25 nA	nein	Woods-Metall
II	ca. 7 K	ca. 2 K	25 MeV O^{4+}	25 nA	nein	L 41
III	2 K	1.3 K	10 MeV O^{3+}	10 nA	ja	L 41

2. Präparation der Tunnelkontakte

Es wurden Tunnelkontakte vom Typ $\text{Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Pb}$ auf folgende Weise hergestellt: Zuerst wurden drei parallele Aluminiumstreifen im Glasrezipienten eines Ultradiffusionspumpstandes bei einem Druck von 10^{-5} Torr aus einem Wolframschiffchen auf Saphirplättchen (20 mm $\times$ 20 mm $\times$ 0.5 mm) aufgedampft. Die Breite der Aluminiumstreifen betrug etwa 0.3, 0.4 und 0.5 mm. Die Aluminiumoberfläche wurde in Sauerstoffatmosphäre von 3 Torr 20 Minuten lang oxidiert. Die Oxidation wurde unterstützt durch eine im Abstand von etwa 3 cm stattfindende Blimmentladung. Im Anschluß daran wurde mit Hilfe einer Drehdurchführung die Aufdampftraskette gedreht, so daß nur ein senkrecht zu den drei Aluminiumstreifen orientierter Bleistreifen von etwa 0.3 mm Breite aufgedampft werden konnte. Dazu wurde der Rezipient auf besser als $8 \cdot 10^{-6}$ Torr evakuiert. Die so erhaltene Probengeometrie zeigt Abb. 30. Während der gesamten Herstellungsprozedur mußten die Substrate nie aus dem Rezipienten herausgenommen werden. Es wurden

auf diese Weise stets drei Tunnelkontakte (Aluminium-Blei-Kreuze) auf einem Substrat unter identischen Bedingungen gleichzeitig hergestellt. Die einzelnen Tunnelkontakte werden im weiteren, wie das folgende Beispiel zeigt, bezeichnet: II 3/1 bedeutet II. Bestrahlungsexperiment, Substrat 3, Tunnelkontakt 1.

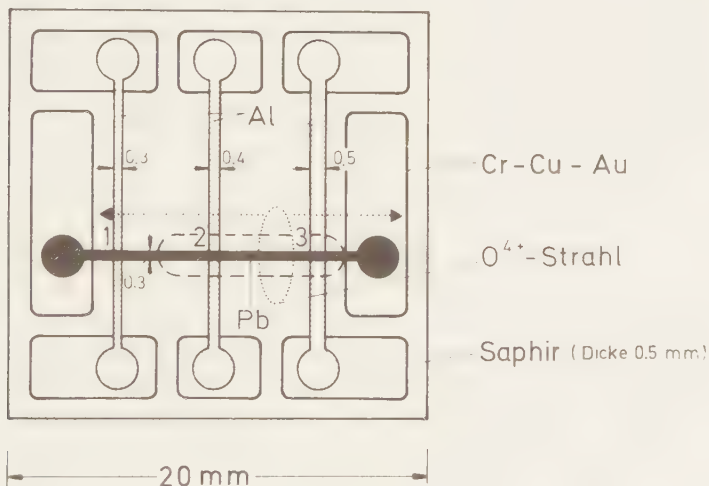


Abb. 30

Probengeometrie. Das punktiert eingezeichnete Oval entspricht etwa dem Querschnitt des Ionenstrahls. Die punktierten Pfeile geben den Bereich an, über den der Strahl mit ca. 200 Hz gewedelt wurde. Außerdem ist die Öffnung der kalten Blende eingezeichnet (gestrichelte Linie).

3. Montage der Proben am Kryostaten

Aufgrund der geringen Reichweite schwerer Ionen in Materie muß eine Bestrahlung im Vakuum erfolgen. Dementsprechend können die Proben nur durch Wärmeleitung durch das Substrat gekühlt werden. Deshalb wurden Saphirplättchen als Substrate gewählt, da sie auch bei tiefen Temperaturen eine vergleichsweise hohe Wärme-

leitfähigkeit besitzen. Neben einer guten thermischen Ankopplung der Saphirsubstrate an den aus Kupfer gefertigten Probenhalter muß auch sichergestellt werden, daß durch die Zuleitungsdrähte keine zusätzliche Wärme direkt auf die Proben geleitet wird. Um die hier skizzierten Anforderungen zu erfüllen, wurden die Saphirsubstrate (Vorderseite poliert, Rückseite fein geschliffen) vor dem Aufdampfen der Tunnelkontakte auf der Rückseite mit Poliersilber *) versehen. Dadurch konnten sie auf den Probenhalter des Kryostaten aufgelötet werden. Ebenfalls vorher wurden die Cr-Cu-Au-Kontaktflächen auf der Vorderseite der Substrate aufgedampft. Weiterhin wurden diese Kontaktflächen und auch die versilberten Rückseiten bereits vor dem Aufdampfen der Tunnelkontakte mit Lot benetzt. Dies geschah, um die Zeitspanne, während der sich die fertigen Tunnelkontakte beim Anlöten auf erhöhter Temperatur befinden mußten, möglichst kurz halten zu können. Dies war nötig, da sich herausstellte, daß die Tunnelkontakte empfindlich auf Erwärmung reagieren: zunächst mit leichter Widerstandszunahme, nach längerer Zeit (ca. 30 Minuten bei 80 °C) traten häufig Kurzschlüsse auf. Es wurden deshalb zum Anlöten der Substrate und der Zuleitungsdrähte Lote mit niedrigem Schmelzpunkt verwendet: beim ersten Bestrahlungsexperiment Woods-Metall ($\text{Bi}_{50}\text{Pb}_{25}\text{Sn}_{12.5}\text{Cd}_{12.5}$, Schmelzpunkt ca. 70 °C), beim zweiten und dritten Bestrahlungsexperiment die Legierung L41 ($\text{Bi}_{40.3}\text{Pb}_{22.2}\text{Sn}_{10.7}\text{Cd}_{8.1}\text{In}_{17.7}\text{Te}_{1.0}$, Schmelzpunkt ca. 41 °C). Der Versuch, reines Gallium (Schmelzpunkt 28 °C) zu verwenden, führte stets zum Abplatzen der Substrate bei tiefer Temperatur. Die verwendeten Widerstandstemperaturfühler (gekapselte Germanium- oder Kohle-Glas-Widerstände **) wurden zusammen mit etwa 15 cm ihrer Zuleitungsdrähte mit Stycast 2850-GT ***) auf ein 1 mm dickes Kupferplättchen geklebt. Auf ein weiteres Kupferplättchen wurde eine Tieftemperatur-Hallsonde ****) mit UHU-plus geklebt. Diese beiden Kupferplättchen wurden auf zwei der sechs Flächen des Probenhalters mit Woods-Metall aufgelötet. Die verbleibenden vier Flächen wurden mit je einem Saphirsubstrat bestückt. Über die Substrate wurde zur Verringerung der Wärmeeinstrahlung und der dem Substrat durch Bestrahlung zugeführten Heizleistung Kupferblenden mit Gallium gelötet. Diese "kalten Blenden" waren mit Schlitzen versehen, die die Tunnelkontakte 2 und 3 und den dazwischen liegenden Teil des Bleifilmes freigaben, während Tunnelkontakt 1 stets vollständig abgedeckt blieb (siehe Abb. 30) und damit Kontrollmessungen ermöglichte.

*) DEGUSSA, 281 P

**) Lake Shore Cryotronics, Westerville, Ohio, USA

***) Emerson & Cuming, Gardena, Calif., USA

****) Siemens, RHY 17

4. Probencharakterisierung

4.1 Tunnelwiderstände

Die Widerstände der Tunnelkontakte wurden unmittelbar nach der Fertigstellung bei Zimmertemperatur mit einer Konstantstromquelle und einem Digitalvoltmeter gemessen. Da bei gelungener Präparation, d.h. falls keine Kurzschlüsse vorhanden sind, die Widerstände der drei Tunnelkontakte auf einem Substrat zueinander im umgekehrten Verhältnis stehen müssen wie die jeweiligen Kreuzungsflächen, wurden zur weiteren Verwendung nur solche Substrate ausgewählt, bei denen dies etwa erfüllt war. Im normalleitenden Zustand ist der Tunnelwiderstand unabhängig von der Temperatur und für kleine Spannungen (< 30 mV) auch unabhängig von der anliegenden Spannung. Abweichungen von diesem idealen Verhalten sind deshalb ein Hinweis auf eventuell vorhandene Löcher in der Oxidschicht und damit auf metallische Brücken. Im supraleitenden Zustand ist aufgrund der Energielücke im Einteilchenanregungsspektrum der Tunnelwiderstand stark von der am Kontakt anliegenden Spannung abhängig. Im Falle von $\text{Al-Al}_{x\text{O}_y}\text{-Pb}$ Kontakten wird er jedoch oberhalb etwa 10 mV asymptotisch dem normalleitenden Tunnelwiderstand gleich, so daß der in diesem Spannungsbereich gemessene Widerstand als asymptotischer Widerstand R_T bezeichnet wird. Analog bezeichnet σ_T die in diesem Bereich ($U > 10$ mV) gemessene differentielle Leitfähigkeit. Bei Temperaturen weit unterhalb der kritischen Temperatur des beteiligten Supraleiters muß entsprechend der in Abschnitt B II geschilderten Strom-Spannungs-Kennlinien die differentielle Leitfähigkeit ohne anliegende Spannung $\sigma(U = 0)$ sehr viel kleiner sein als σ_T . Dies stellt einen kritischen Test für das Vorhandensein von Leckströmen dar. Bei den für Bestrahlungsexperimente verwendeten Tunnelkontakten wurde stets $\sigma(U = 0)/\sigma_T < 10^{-3}$ gemessen. Dies war bei Tunnelwiderständen R_T zwischen 50Ω und $2 \text{ k}\Omega$ auch etwa gleichzeitig die Meßgrenze.

Es wurde beobachtet, daß die Tunnelwiderstände von der Präparation bis zum ersten Abkühlen des Kryostaten (Zeitdauer etwa 8 - 12 Stunden) um ca. 10 % anstiegen. Dieser Alterungsvorgang, der vermutlich durch Diffusion von Sauerstoff in der Oxidbarriere hervorgerufen wird, wird durch Temperaturerhöhung stark beschleunigt. Bei Temperaturen unterhalb 77 K jedoch wurden über mehrere Wochen hinweg keine Veränderungen an den Tunnelkontakten bemerkt. Während ein kleiner Teil der Tunnelkontakte bereits bei einmaligem Wiederaufwärmen und nochmaligem Abkühlen Kurzschlüsse aufwies, überstanden die meisten mehrere solcher Temperaturzyklen ohne Schaden.

4.2 Reinheit der Bleifilme

Da das Schwingungsverhalten von möglichst kleinen und definierten ZGA-Agglomeraten in Blei untersucht werden sollte, war es notwendig, von reinen Bleifilmen auszugehen. Als Maß zur Charakterisierung kann das Restwiderstandsverhältnis $\rho(273\text{ K})/\rho(7,5\text{ K})$ dienen. Die gewählte Probengeometrie erlaubt eine genaue 4-Punkt-Messung des Widerstandes der Bleistreifen. Dazu wird durch den Bleifilm ein konstanter Strom geschickt (100 μA) und die Aluminiumfilme werden als Spannungssonden verwendet. Die Tunnelwiderstände der Kontakte 2 und 3 treten auf diese Weise zwar als Kontaktwiderstände in Spannungsmeßkreis auf, was jedoch bei Verwendung von hochohmigen Digitalvoltmetern ohne nachteiligen Einfluß bleibt. Der relative Fehler bei der Widerstandsbestimmung ist kleiner als $5 \cdot 10^{-4}$. Aus dem Widerstand bei 273 K und der gemessenen Breite und Länge der Bleifilme zwischen den Aluminiumfilmen kann die Dicke der Filme berechnet werden. Als spezifischer Widerstand bei 273 K wurde der Wert $\rho_B(273\text{ K}) = 19,35\text{ }\mu\Omega\text{cm}$ verwendet⁸²⁾. Eine Unsicherheit bei der Dickenbestimmung stellen die Randschichten der aufgedampften Filme dar, zumal die Querschnitte dadurch nicht mehr rechteckig sind. Mechanisches Abkratzen der Randschichten⁴⁴⁾ konnte nicht durchgeführt werden, da dabei die Gefahr der Verletzung der dünnen Oxidtunnelbarriere zu groß ist. Die auf diese Weise bestimmte Dicke der Bleifilme betrug etwa 125 - 260 nm. Der Versuch, dickere Bleifilme aufzudampfen, führte stets zum Kurzschluß der Tunnelkontakte, was vermutlich auf zu starke Erwärmung während des Aufdampfens zurückzuführen ist. Wegen der geringen Dicke der Filme verursacht die Streuung der Leitungselektronen an der Oberfläche bei tiefen Temperaturen den Hauptanteil des Widerstandes. Um den tatsächlich von Gitterimperfektionen herrührenden Widerstand zu ermitteln, wurde daher eine size-effect Korrektur durchgeführt. Im folgenden dient der Index F zur Kennzeichnung von Größen, die auf einen Film bezogen sind, der Index B kennzeichnet "bulk"-Eigenschaften. Zur Korrektur wurde die size-effect Konstante $K = \rho_B \cdot l = 15,9 \cdot 10^{-12}\text{ }\Omega\text{cm}^2$ verwendet⁴⁴⁾. Hierbei bezeichnet l die mittlere freie Weglänge. Die Tabelle 4 zeigt eine Zusammenstellung wichtiger Eigenschaften der Bleifilme. Die Länge der Filme zwischen den Aluminiumstreifen (Spannungskontakten) betrug ca. 4,7 mm, die Breite ca. 0,3 mm. Der Fehler in der Dickenbestimmung wird zu etwa 10 % abgeschätzt.

Tabelle 4

Eigenschaften der Bleifilme

Probe	d (nm)	$R_{7,5K}$ (Ω)	$\frac{R_{273K}}{R_{7,5K}}$	$\rho_F(7,5K)$ ($n\Omega m$)	$\rho_B(7,5K)$ ($n\Omega m$)	$\frac{\rho_B(273K)}{\rho_B(7,5K)}$
I1	136	0,4744	47	4,105	0,4046	478
I2	175	0,3274	53	3,655	0,5214	371
I3	125	0,7406	33	5,917	1,1758	165
I4	147	0,4531	46	4,249	0,5720	338
II1	199	0,3050	50	3,871	0,8293	233
II2	124	0,5926	41	4,698	0,5288	366
II3	195	0,2870	54	3,563	0,6138	315
III1	184	0,2923	56	3,432	0,4774	405
III2	256	0,1975	60	3,223	0,7820	247
III3	194	0,2465	64	3,045	0,3520	549
III4	259	0,1725	68	2,848	0,5576	347

Unter vergleichbaren Bedingungen hergestellte 3 μm dicke Filme ⁴⁴⁾ hatten ein bulk-Restwiderstandsverhältnis von 1000 bis 1500. Die aufgetretenen Unterschiede könnten entweder durch ungenügende size-effect-Korrektur bei diesen sehr dünnen Filmen oder durch stärkeren Einfluß der Randschichten auf die Dickenverteilung der Filmquerschnitte verursacht werden, da eine vergleichbare Reinheit wie bei den dickeren Filmen zu vermuten ist.

II. Messungen

1. Spezifischer Widerstand und kritische Temperatur

Der spezifische Widerstand der Bleifilme wurde im normalleitenden Zustand bei einer Temperatur von 7,5 K gemessen. Zum Teil wurden bei 2 K bzw. 1,3 K zusätzliche Messungen in einem überkritischen Magnetfeld durchgeführt. Die Widerstandsmessung erfolgte mit 4-Pol Methode. Dazu wurde durch die Bleifilme ein konstanter Strom von 100 μ A oder 1 mA geschickt und die an den Aluminiumfilmen 2 und 3 abfallende Spannung mit einem Digitalvoltmeter (Auflösung 100 nV) gemessen. Thermospannungen wurden durch Stromumpolung eliminiert. In ähnlicher Weise wurde die supraleitende kritische Temperatur gemessen (siehe Abb. 31). Die Phasenübergänge wurden mit einem XY-Schreiber - Probenspannung am Y-Eingang, Temperaturfühlerspannung am X-Eingang - aufgezeichnet. Zur detaillierten Darstellung der sehr scharfen Phasenübergänge (Übergangsbreite < 10 mK) wurde der Spannungsabfall am Temperaturfühler teilweise kompensiert und die Abweichung entsprechend verstärkt. Als Temperaturfühler wurden geeichte, gekapselte Germanium- und Konle-Glas-Widerstände verwendet, deren temperaturabhängiger Widerstand ebenfalls in Vierpolanordnung gemessen wurde. Die Temperaturfühler und Proben wurden auf dem Probenkopf, der eine sechszählige Symmetrieachse aufweist, auf äquivalenten Plätzen montiert. Die Temperatur des Probenkopfes wurde über einen zweiten Temperaturfühler durch Variation von Kühlleistung und Heizleistung mit einem Temperaturregelgerät geregelt.

Als kritische supraleitende Temperatur wird wie allgemein üblich die Temperatur bezeichnet, bei der der normalleitende Widerstand R_n auf den halben Wert abgesunken ist. Als Breite des supraleitenden Phasenübergangs wird die Temperaturdifferenz zwischen $0,1 R_n$ und $0,9 R_n$ bezeichnet. Der relative Fehler in der Bestimmung von T_c beträgt ca. 2 mK.

Die Heizleistung im Temperaturfühler und in der Probe durch die Meßströme betrug jeweils etwa 100 nWatt.

Aus den Filmwiderständen ρ_F wurden die Bulk-Widerstände ρ_B durch size-effect-korrektur bestimmt, dessen bestrahlungsinduzierte Änderung $\Delta \rho_B$ ein Maß für die Frenkeldefektkonzentration darstellt.

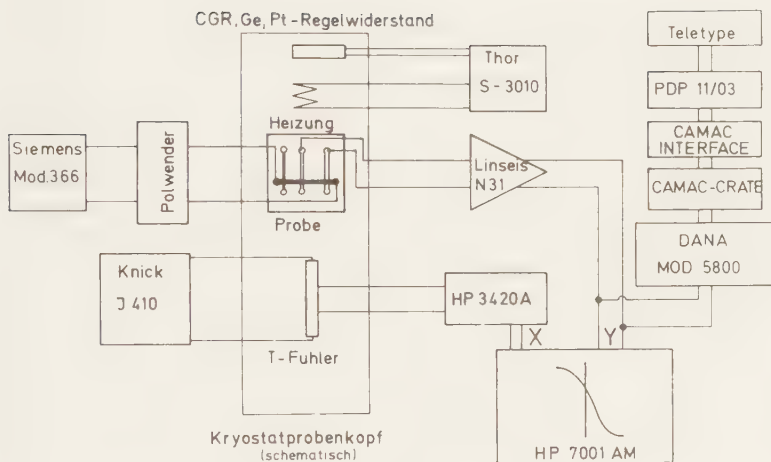


Abb. 31

Schematische Darstellung der Messung des spezifischen Widerstandes und der kritischen Temperatur. Der eingerahmte Teil entspricht dem Probenhalter des Bestrahlungskryostaten.

2. Messung der Tunnelcharakteristik

2.1 Grundsätzliche Überlegungen

Die Geometrie eines Tunnelkontaktes in Form von zwei gekreuzten Filmen erlaubt die Vierpolmessung von Strom und Spannung. Schwierigkeiten verursachen bei dieser empfindlichen Messung die zwangsläufig relativ langen Zuleitungsdrähte von den Meßgeräten zum Probenkopf des Kryostaten (insgesamt ca. 6 m) und das Auftreten von Bereichen mit negativem differentiellen Widerstand, falls beide Elektroden supraleitend sind. Erschwerend ist in dieser Hinsicht auch, daß die Messungen in der Targethalle eines Beschleunigers stattfinden mußten. Die Vielzahl der dort arbeitenden elektrischen Geräte verursacht ein erhebliches Maß an elektronischen Störungen. Zusätzlich scheinen auch die Erdleitungen - Schutzkontakt des Netzes und zusätzliche Sondererdleitung - an vielen Stellen miteinander verbunden zu sein und in ihrem Potential Schwankungen um einige hundert mV unterworfen zu sein.

Elektronisches Rauschen kann bei der Messung von stark nichtlinearen Kennlinien leicht zu einer Verschmierung der interessierenden Strukturen, die eine Breite von etwa 100 μV haben, führen. Aus diesem Grunde verwenden andere Gruppen, die nicht an einem Beschleuniger arbeiten, bei der supraleitenden Tunnelspektroskopie häufig spezielle Abschirmungen für geschlossene Meßplätze einschließlich Kryostat und Experimentator aus Metall- μ -Metall-Schichtstrukturen gegen externe elektrische und magnetische Felder. Auch werden für solche Experimente zum Teil spezielle Erdleitungen gelegt. Abgesehen von diesen rigorosen Maßnahmen, die nicht möglich waren, wurde alles unternommen, um Störungen und Rauschen möglichst weitgehend zu eliminieren. Alle an der Messung beteiligten Geräte wurden isoliert in die Racks eingebaut. Mit Ausnahme vom Lock-in Verstärker wurden von den Netzleitungen die Schutzkontakte unterbrochen und die Gerätegehäuse zentral am Lock-in Verstärker geerdet. Alle beteiligten Kabel waren in Koaxial-Bauweise ausgeführt. Die wichtigsten Zuleitungen von der Meßelektronik zum Kryostaten waren noch zusätzlich abgeschirmt. Die Modulationsspannung wurde galvanisch getrennt über einen Übertrager eingekoppelt. Periphere Meßgeräte wie X-Y-Schreiber und Digitalvoltmeter wurden, sofern sie die Messung beeinträchtigen, über selbstgebaute Trennverstärker angeschlossen. Innerhalb des Kryostaten wurden die Meßleitungen in einem zusätzlichen V_2A -Rohr, separat von den übrigen Überwachungs- und Regelleitungen des Kryostaten, zum Probenkopf geführt. Bei der unbedingt erforderlichen thermischen Ankopplung der Zuleitungen wurde darauf geachtet, daß zusammengehörige Leitungspaare stets nahe beieinander und bifilar aufgewickelt wurden. Sämtliche metallische Verbindungen des Probenkryostaten und Magnetkryostaten wie Heliumabgas- und Abpumpleitungen wurden mit Teflonzwischenstücken isoliert, um ihre Antennenwirkung auszuschließen. Ebenso wurde auch der Magnetkryostat von der Strahlrohrkammer und damit vom Beschleuniger durch eine dazwischengelegte (hochvakuumdichte) Teflonfolie isoliert.

2.2 Meßelektronik

Es war das Ziel, einen Meßaufbau zu entwickeln, der es ermöglicht, die Strom-Spannungs-Kennlinie und deren erste und zweite Ableitung, elektronisch differenziert, zu bestimmen. Die Schaltung sollte sowohl für sehr niederohmige Tunnelkontakte ($R_T \approx 1 \Omega$) als auch für hochohmige ($R_T \approx 10 \text{ k}\Omega$) geeignet sein, da - wie bereits ausgeführt - der Widerstand stark von den Präparationsbedingungen abhängt und auch, wie sich zeigte, von der Bestrahlung.

Eine in der Literatur häufig benutzte und bewährte Meßmethode ist eine Meßbrücke nach Adler und Jackson⁸³⁾. Diese Meßbrücke bedarf einer relativ langwierigen Abgleichprozedur bei jeder Probe und ist zudem nicht geeignet, bis zu besonders niedrigen Spannungen zu messen, da sie dann stark verstimmt wird. Ihr Hauptnachteil für unseren Zweck ist jedoch die Tatsache, daß sie bei der Ableitungsmessung eine Modulation des durch den Kontakt fließenden Wechselstromes anwendet und die anliegende Wechselspannung gemessen wird. Da jedoch für die Tunnelcharakteristiken die Energieskala und damit die Spannung von primärer Bedeutung ist, bedeutet dies, daß man zum unmittelbaren Vergleich verschiedener Messungen in jedem Fall die Größe des Modulationsstromes neu bestimmen und einstellen muß. Mit einer Adler-Jackson Brücke wird demnach der differentielle Widerstand dU/dI bzw. dessen Ableitung d^2U/dI^2 gemessen. Gegenüber der Strommodulation, die leicht durch einen sehr großen Vorwiderstand im Wechselstromkreis bewerkstelligt werden kann, ist eine Modulation der am Kontakt anliegenden Spannung mit einer Wechselspannung konstanter Amplitude sehr viel aufwendiger und ohne aktive elektronische Elemente nicht zu verwirklichen. Der Vorteil einer Spannungsmodulation besteht darin, daß sie unmittelbar die differentielle Leitfähigkeit $\sigma(U) = dI(U)/dU$ bzw. deren Ableitung liefert. Bei vollkommen perfekten Tunnelkontakten, d.h. falls keine Leckströme durch die Tunnelbarriere aufgrund anderer Leitungsmechanismen vorhanden sind, sind die Methoden äquivalent, da $dI/dU = (dU/dI)^{-1}$ und $d^2I/dU^2 = -(d^2U/dI^2) \cdot (dU/dI)^{-3}$. Im Falle vorhandener Leckströme, wie sie bei Bestrahlung zu erwarten waren, verhalten sich die beiden prinzipiellen Meßmethoden sehr unterschiedlich: Während bei der Strommodulation starke Verzerrungen in der 1. und 2. Ableitung auftreten, überlegt man sich leicht, daß Ohm'sche Leckströme bei einer Spannungsmodulation in der 1. Ableitung nur zu einer additiven Konstanten führen und in der 2. Ableitung überhaupt nicht in Erscheinung treten. Ein weiterer, nicht zu unterschätzender Gesichtspunkt bei der Entwicklung der Meßelektronik war auch das Bestreben, die notwendigen Zeiten zur Einstellung und eigentlichen

Messung in vertretbaren Grenzen zu halten. Es wurde nach einer Bestrahlungsdosis für jeden Tunnelkontakt auf einem Substrat die Kennlinie $I(U)$ im supra-leitenden Zustand, die 1. und 2. Ableitung (dI/dU und d^2I/dU^2) im normal- und supraleitenden Zustand und die 1. Ableitung bei veränderter Einstellung im Bereich der Energielücke im supraleitenden Zustand gemessen. Abgesehen von den recht schnell zu messenden Kennlinien waren damit fünf Messungen pro Kontakt, also 15 Messungen pro Substrat, durchzuführen. Zusätzlich wurden bei jeder dieser Messungen zur Kontrolle beide Polaritäten durchfahren. Die höchste zulässige Geschwindigkeit, mit der Tunnelcharakteristiken aufgenommen werden können, hängt ab von der Zeitkonstanten des Lock-in Verstärkers τ : Für die Zeitspanne Δt , in der sich das Signal merklich ändert, muß gelten $\Delta t > \tau$. Andererseits hängt die Zeitkonstante τ vom tolerierbaren Rauschen am Ausgang des Lock-in Verstärkers und damit vom Signal zu Rausch Verhältnis ab. In der Literatur werden deshalb häufig Messungen mit großen Zeitkonstanten und Meßzeiten von einigen Stunden berichtet. Im Rahmen von Strahlzeiten an Beschleunigern können solche Einstellungen nicht gewählt werden, da pro Dosis Gesamtmeßzeiten von einigen Tagen die Folge wären. Mit der in Abb. 32 dargestellten Schaltung gelang es, die zur Berechnung von $\alpha^2 F(\omega)$ wichtige differentielle Leitfähigkeit mit einer Genauigkeit von besser als $5 \cdot 10^{-4}$, was vergleichbar ist mit den besten in der Literatur beschriebenen Verfahren, und einer Durch-fahrtsgeschwindigkeit von etwa 1 mV/10 sec zu messen. Für den aufgenommenen Spannungsbereich von etwa -30 mV bis +30 mV betrug die reine Meßzeit also etwa 10 Minuten. Die Messungen eines vollständigen Kurvensatzes für 1 Substrat (1 Bestrahlungsdosis) dauert insgesamt etwa vier Stunden.

Die in Abb. 32 dargestellte Schaltung wird im folgenden knapp erläutert. Der erste Teil ist ein Integrator (AD 503 KH). Durch mehrere Widerstände kann die aufzuintegrierende Spannung U_{int} in festen Stufen (± 1.4 mV; ± 14 mV; ± 140 mV; $\pm 1,26$ V und ± 7 V) gewählt und durch ein Potentiometer noch stufenlos unter-setzt werden. Für die Spannung U_A am Ausgang des Integrators gilt damit $U_A = \frac{1}{RC} \int U_{\text{int}} dt$. In der hier verwendeten Schaltung ist $R \cdot C = 50 \text{ k} \Omega \cdot 22 \mu\text{F} \approx 1 \text{ sec}$. Das heißt bei den oben angegebenen Spannungen U_{int} erreicht der Ausgang des Integrators die Versorgungsspannung von ± 14 V in der Zeit $t = (14V/U_{\text{int}}) \cdot R \cdot C$ (hier: 10000, 1000, 100, 11 und 2 sec). Durch eine Spannungsteilerschaltung wird die integrierte Spannung heruntergeteilt. Die so erhaltenen Grenzwerte be-tragen 10, 20, 40, 100, 200 und 1000 mV. Die Durchfahrtsgeschwindigkeit wird durch beide Einstellungen bestimmt: Geschwindigkeit = Grenzwert/Integrations-zeit. Zu dieser linear mit der Zeit zunehmenden Spannung wird mit Hilfe einer Addierschaltung (AD 504 JH) eine Wechselspannung, die selbst noch um etwa

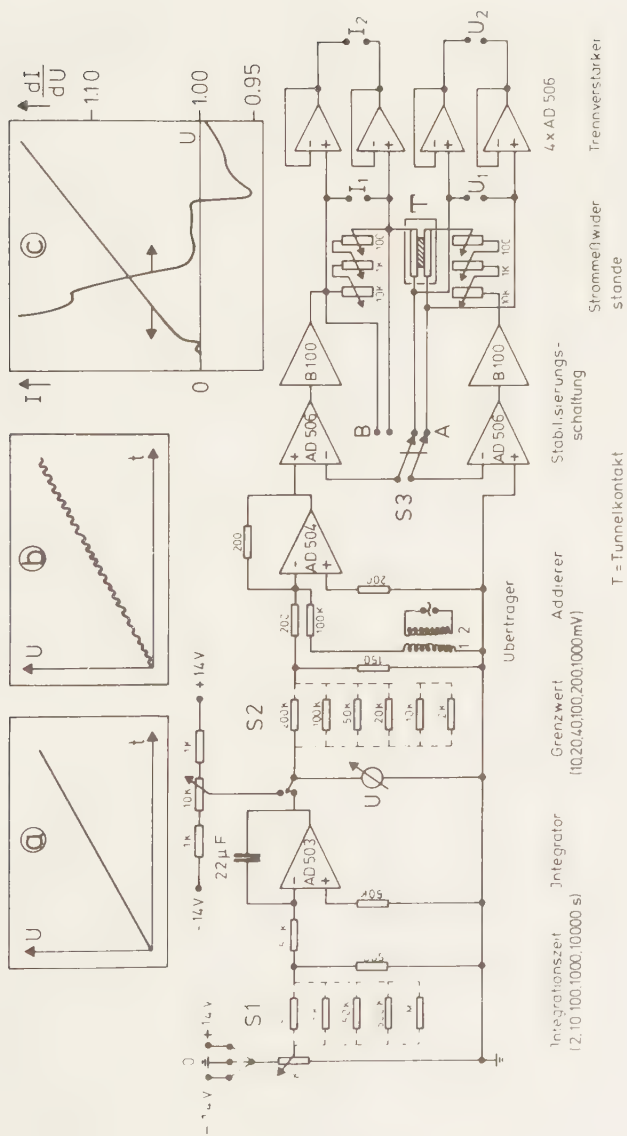


Abb. 32

Schaltbild zur Spannungs- bzw. Strommodulation

einen Faktor 1000 abgeschwächt wird (genauer: 1136), addiert. Am Eingang der eigentlichen Spannungsstabilisierungsschaltung liegt also eine modulierte, mit der Zeit linear zunehmende (oder abnehmende) Spannung an (b). Die beiden Operationsverstärker AD 506 LH steuern den Strom durch den Tunnelkontakt so, daß an ihren Eingängen jeweils die Spannungsdifferenz null wird. Demnach liegt, falls sich Schalter S3 in Stellung A befindet, an den (stromlosen) Spannungskontakten des Tunnelkontaktes dieselbe Spannungsdifferenz an, wie sie zwischen den beiden positiven Eingängen der Operationsverstärker besteht, also die am Ausgang des Addierers erzeugte modulierte Spannung. Die Größe der Spannungsmodulation ist im Rahmen des Aussteuerbereiches unabhängig vom Widerstand des Tunnelkontaktes und vom Gleichspannungsniveau. Die Amplitude des Wechselstromanteils mit Frequenz ω durch den Tunnelkontakt (I_ω) ist demnach direkt proportional der differentiellen Leitfähigkeit $\sigma = dI/dU$. Allgemein gilt für den Strom im Falle der Spannungsmodulation:

$$\begin{aligned}
 I(U_B + \delta U \cos \omega t) &= I(U_B) + \left. \frac{dI}{dU} \right|_{U_B} \cdot \delta U \cos \omega t + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 I}{dU^2} \right|_{U_B} \delta U^2 \underbrace{\cos^2 \omega t}_{\frac{1}{2}(1 + \cos 2\omega t)} + \dots \\
 &= \underbrace{\left(I(U_B) + \frac{1}{4} \left. \frac{d^2 I}{dU^2} \right|_{U_B} \cdot \delta U^2 \right)}_{I_0} + \underbrace{\left. \frac{dI}{dU} \right|_{U_B} \cdot \delta U \cos \omega t}_{I_\omega} + \underbrace{\frac{1}{4} \left. \frac{d^2 I}{dU^2} \right|_{U_B} \cdot \delta U^2 \cdot \cos 2\omega t}_{I_{2\omega}} + \dots \quad (33)
 \end{aligned}$$

Hierbei ist U_B die anliegende Gleichspannung und δU die Amplitude der Spannungsmodulation. Die Amplitude des Wechselstromes mit Frequenz 2ω ($I_{2\omega}$) ist proportional zur 2. Ableitung $d^2 I/dU^2 = d\sigma/dU$. Wählt man den Strommeßwiderstand so, daß er gleich dem differentiellen Tunnelwiderstand weit außerhalb des durch die Phononen modifizierten Bereiches ist, bei Blei etwa 28 mV, so ist das Meßsignal bei allen Tunnelkontakten unabhängig vom Tunnelwiderstand und die Meßkurven werden unmittelbar vergleichbar. Die geschilderte Schaltung ist bei nicht zu kleinen Tunnelwiderständen auch geeignet, Kennlinien mit Bereichen negativer differentieller Leitfähigkeit aufzunehmen. Dies ist in Abb. 33 am Beispiel der Temperaturabhängigkeit der Strom-Spannungs-Kennlinie eines $Al-Al_{xO_y}$ -Pb Kontaktes gezeigt. Bei Temperaturen unterhalb etwa 1.8 K wird der aufgedampfte Aluminiumfilm supraleitend, und es entsteht eine mit abnehmender Temperatur ausgeprägter werdende Supraleiter-Isolator-Supraleiter Kennlinie.

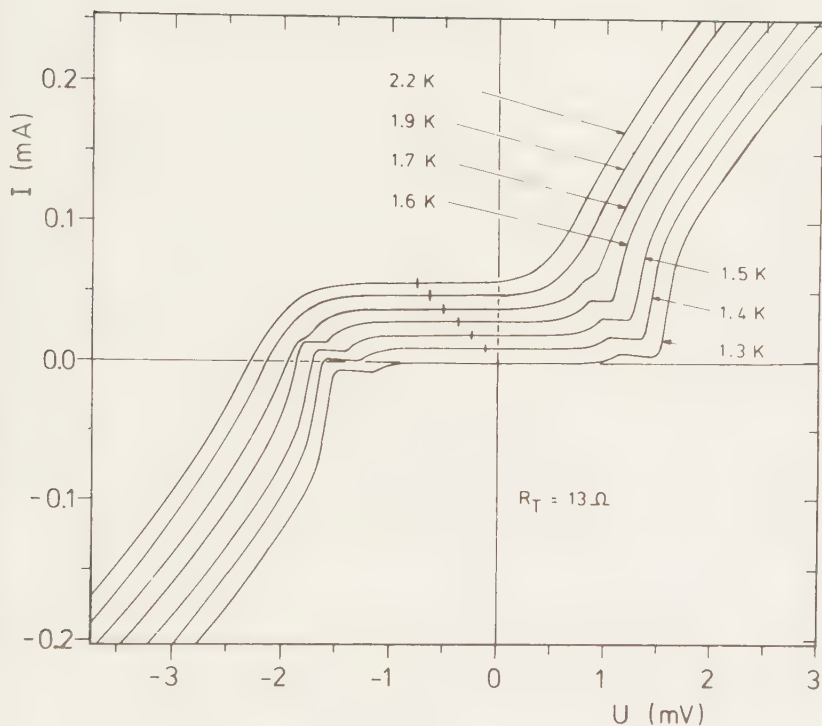


Abb. 33

Temperaturabhängigkeit der Strom-Spannungs-Kennlinie eines $\text{Al-Al}_{x,y}\text{O}_y\text{-Pb}$ Tunnelkontaktes. Die supraleitende kritische Temperatur des aufgedampften Aluminiumfilms beträgt ca. 1.7 K.

In Stellung B des Schalters S3 stabilisieren die Operationsverstärker die Spannung an den Strommeßwiderständen und damit den Strom durch den Tunnelkontakt. In diesem Fall wird also der Strom mit einem Wechselstrom konstanter Amplitude moduliert (Strommodulation) und analog zu Gl. 33 gilt für die am Tunnelkontakt anliegende Spannung:

$$U(I_B + \delta I \cos \omega t) =$$

$$= \underbrace{(U(I_B) + \frac{1}{4} \frac{d^2 U}{dI^2} \Big|_{I_B} \cdot \delta I^2)}_{U_0} + \underbrace{\frac{dU}{dI} \Big|_{I_B} \cdot \delta I \cos \omega t}_{U_\omega} + \underbrace{\frac{1}{4} \frac{d^2 U}{dI^2} \Big|_{I_B} \cdot \delta I^2 \cos 2\omega t}_{U_{2\omega}} + \dots \quad (34)$$

wobei I_B der durch den Kontakt fließende Gleichstrom und δI die Wechselstromamplitude ist. Damit ist die Amplitude der Wechselspannung mit Frequenz ω (U_ω) proportional dem differentiellen Widerstand $\rho = dU/dI$ und die Amplitude der Wechselspannung mit Frequenz 2ω ($U_{2\omega}$) proportional zur 2. Ableitung $d^2U/dI^2 = d\rho/dI$. Abb. 34 zeigt in überzeugender Weise die Funktionsfähigkeit der geschilderten Schaltung für beide Meßmethoden am Beispiel von $\sigma(U)$ und $\rho(U)$ eines $Al-Al_{x_0y}$ -Pb Tunnelkontaktes. Der Effektivwert der Modulationsspannung betrug etwa 85 μV bei Messungen der 1. Ableitung. Dies ist weniger als die thermische Verbreiterung. Bei Verwendung der vollen 10fachen Nullpunktsunterdrückung des Lock-in Verstärkers (PAR 124A) kann damit bei einem Strommeßwiderstand $R_{Me\beta}$ in der Größe des asymptotischen Tunnelwiderstandes R_T die 1. Ableitung im 10 μV Bereich gemessen werden. Demgegenüber ergibt eine Abschätzung der Signalgröße bei der Messung der 2. Ableitung:

$$U_{2\omega} = \frac{1}{4} \frac{d\sigma}{dU} (\delta U)^2 \cdot R_{Me\beta} = \frac{1}{4} \frac{4 \cdot 10^{-2}}{mV} \frac{R_{Me\beta}}{R_T} (\delta U)^2 \approx 10^{-2} \frac{(\delta U)^2}{mV} \quad (35)$$

Hierbei wurde verwendet, daß $d\sigma/dU$ maximal $4 \cdot 10^{-2} R_T^{-1} mV^{-1}$ ist (entsprechend longitudinalem Phononenpeak). Das bedeutet, daß δU etwa 0.4 mV rms betragen muß, wenn das (maximale) Signal nicht wesentlich unter 2 μV sinken soll. Eine mit dieser Einstellung aufgenommene 2. Ableitung zeigt Abb. 35. Obwohl hier die beiden großen Strukturen, die vom transversalen und longitudinalen Phononenzweig von Blei herrühren, sehr gut zu erkennen sind, bedeutet die vergleichsweise große Modulationsamplitude, daß kleine bestrahlungsinduzierte Strukturen praktisch nicht aufgelöst werden. Die Messung der 2. Ableitung nach Bestrahlung ist jedoch insofern wertvoll, da damit direkt gezeigt werden kann, daß sich der transversale und longitudinale Phononenpeak in $\alpha^2 F(\omega)$ nicht ändert, auch bei Vorhandensein von bis zu 30 % näherungsweise Ohm'scher Leckströme.

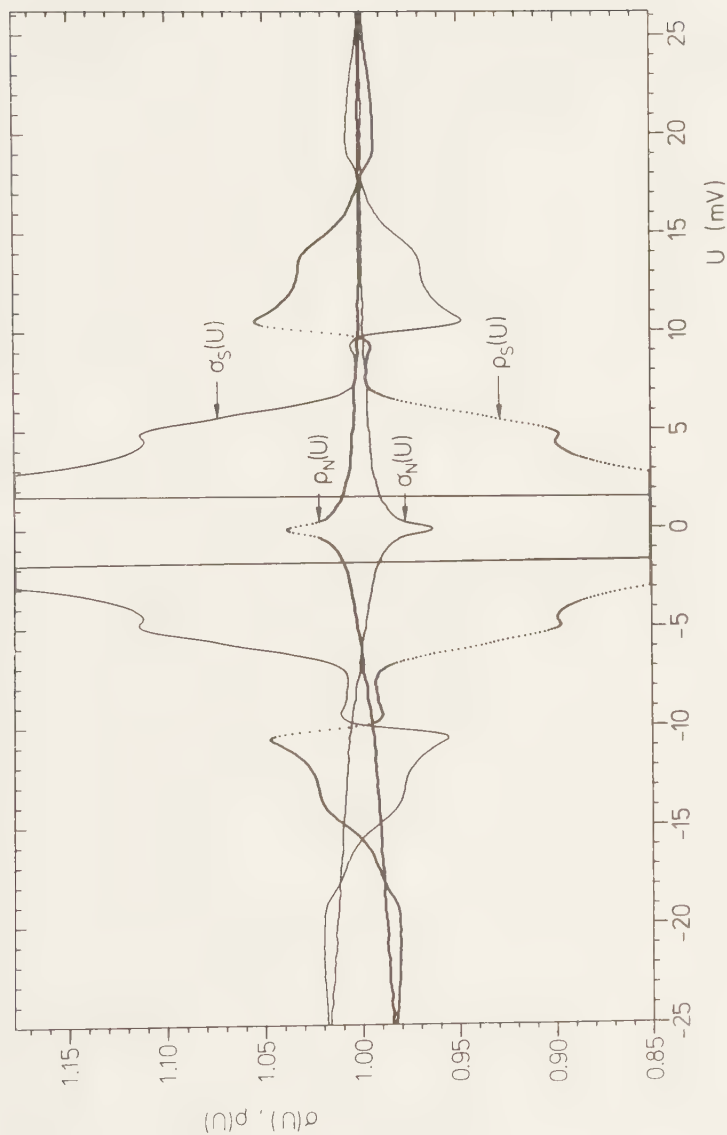


Abb. 34

Differentielle Leitfähigkeit $\sigma(U)$ und differentieller Widerstand $\rho(U)$ eines Al-Al_xO_y-Pb Tunnelkontaktes bei 1.3 K

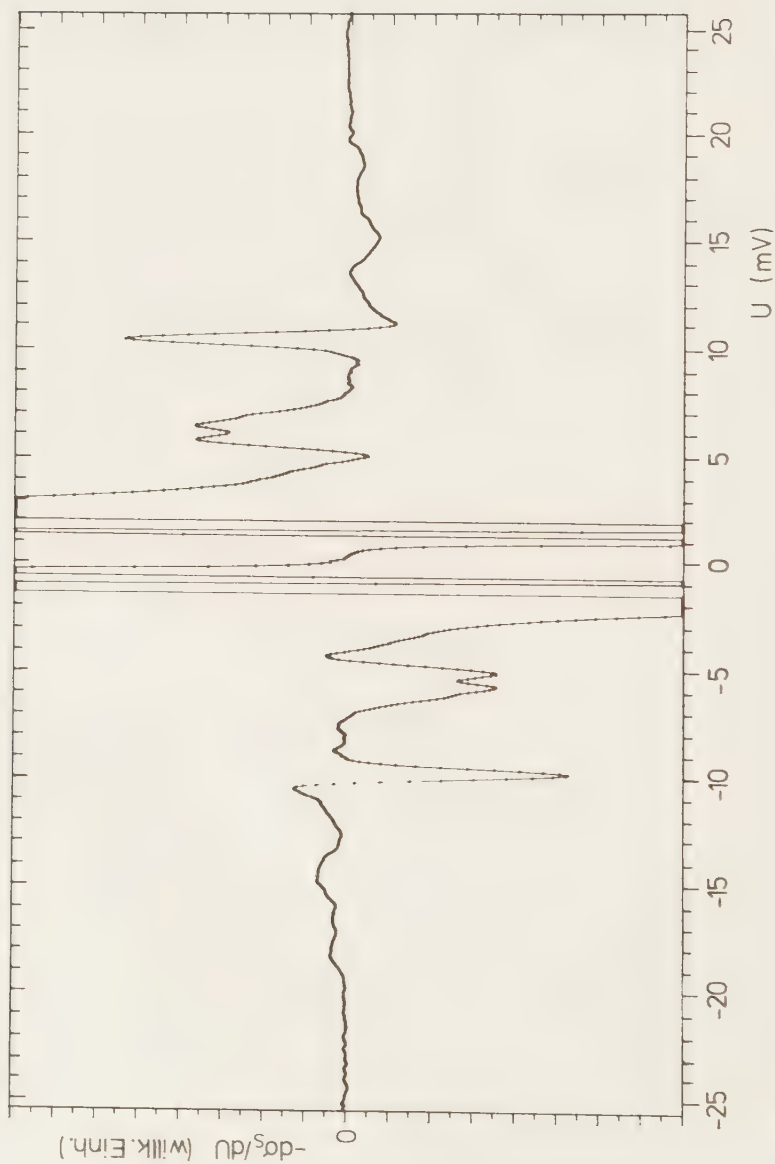


Abb. 35

Zweite Ableitung der Strom-Spannungs-Kennlinie eines $\text{Al-Al}_x\text{O}_y$ -Pb Tunnelkontaktes bei 1.3 K

Ein typisches Beispiel der Messung der differentiellen Leitfähigkeit $\sigma(U)$ im Bereich der Energielücke, zusammen mit der entsprechenden Kennlinie, zeigt Abb. 36. Aus den charakteristischen Strukturen dieser Kurve können mit hoher Genauigkeit die Energielücken von Aluminium und Blei bestimmt werden. Das lokale Maximum in der Kennlinie bei $eU = \Delta_{Pb} - \Delta_{Al}$ entspricht dem Nulldurchgang von σ , der steile Anstieg bei $eU = \Delta_{Pb} + \Delta_{Al}$ entspricht dem hohen Peak in σ . Durch Messung beider Polaritäten können off-set und Thermospannungen eliminiert werden. Wie die Abbildungen 33 bis 36 zeigen, konnten trotz der ungünstigen elektronischen Bedingungen am Beschleuniger alle Details der Tunnelkennlinie und ihrer Ableitungen mit sehr guter Auflösung gemessen werden.

2.3 Fehlerbetrachtung

Fehlerquellen bei der Messung entstehen allgemein aus der begrenzten Stabilität der beteiligten Bauelemente, insbesondere der Amplitude der Modulationsspannung und der Drift des Lock-in Verstärkers, möglichen Fehlerströmen in Eingänge der Meßgeräte und die dadurch verursachten Spannungsdifferenzen und der Genauigkeit des Aussteuervermögens der Stabilisierungsschaltung. Der zur Versorgung der Modulationsspannung verwendete Oszillator (Krohn-Hite 4001 A) hat eine Amplitudenstabilität von $\pm 0.01\%$ pro Stunde. Der im low-drift-mode eingesetzte Lock-in Verstärker (PAR 124 A) hat eine Stabilität von 15 ppm/°C und 100 ppm/24 Stunden. Alle Widerstände in der Schaltung sind Metallfilmwiderstände mit geringer Temperaturdrift. Die verwendeten Präzisionsverstärker haben Eingangsruheströme kleiner 5 pA (typisch: 2 pA) und Eingangsimpedanzen von $10^{11} \Omega$. Die dadurch verursachten Fehler in der Strommessung sind selbst bei sehr hochohmigen Tunnelkontakten ($R_T \approx 10^4 \Omega$) kleiner 10^{-5} . Die durch Eingangsströme entstehenden Spannungsdifferenzen an den Zuleitungswiderständen ($< 20 \Omega$) betragen etwa 10^{-10} V und sind damit ebenfalls vernachlässigbar. Der Eingangswiderstand des Lock-in Verstärkers, der meist direkt ohne Trennverstärker angeschlossen war, beträgt $100 M\Omega$, so daß die dadurch verursachten Fehler kleiner 10^{-10} sind. Die hohe Leerlaufverstärkung (75000) sorgt für eine ausreichend exakte Aussteuerung des Stromes. Die Konstanz der am Tunnelkontakt anliegenden Wechselspannung wurde überprüft und ist besser als 10^{-4} .

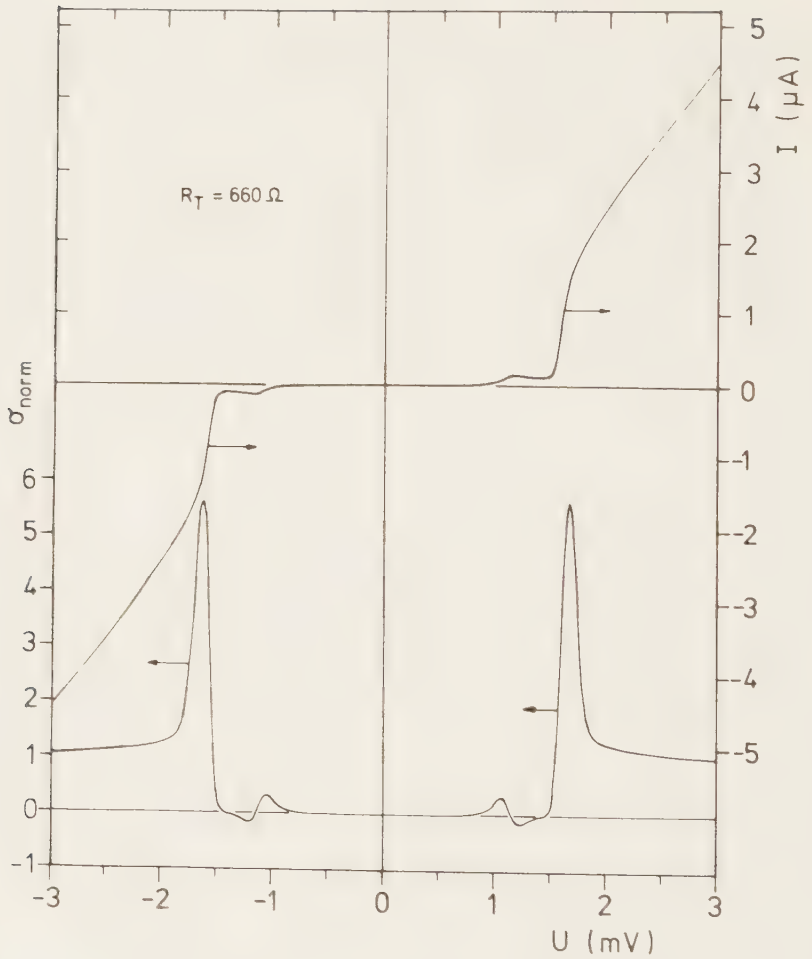


Abb. 36

Kennlinie und differentielle Leitfähigkeit $\sigma(U)$ eines $\text{Al-Al}_x\text{O}_y\text{-Pb}$ Tunnelkontaktes bei 1.3 K im Bereich der Energielücke.

Fehler könnten entstehen bei der Messung der differentiellen Leitfähigkeit eines Tunnelkontaktes bei tiefer Temperatur in der Nähe von $U = 0$, da dort der differentielle Widerstand bei guten Tunnelkontakten - d.h. ohne nachweisbare Leckströme - mehr als einen Faktor 10^3 größer ist als der asymptotische Widerstand. Das bedeutet, er kann leicht die Größenordnung Megaohm erreichen. Zu diesem Zweck kann durch einen Schalter anstelle des Tunnelkontaktes eine Widerstandsdekade angeschlossen werden. Obwohl der Absolutwert des Signals verfälscht sein kann, läßt sich so mit guter Genauigkeit der differentielle Widerstand bestimmen, da er - bei gleicher Signalgröße - gleich dem eingestellten Widerstand der Dekade ist. Dieser Messung kommt insofern Bedeutung zu, weil durch sie die Leckströme eines Tunnelkontaktes und damit die Qualität der Oxidbarriere abgeschätzt werden können.

3. Datenaufnahme

Zur weiteren Datenbearbeitung wurden die Meßkurven mit Hilfe von Camac und dem real-time Fortran-System Forcam⁸¹⁾, parallel zur Aufzeichnung auf einem X-Y-Schreiber, über zwei 5 1/2 stellige Digitalvoltmeter (Dana 5800 A) in einen PDP 11/40 Computer transferiert und auf Magnetbänder abgespeichert. Dazu wurde sowohl die am Tunnelkontakt anliegende Gleichspannung (X-Dana) als auch der Ausgang des Lock-in Verstärkers (Y-Dana; dI/dU , d^2I/dU^2) mit jeweils einem dieser hochauflösenden Voltmeter gemessen und deren BCD-Ausgänge über 24-bit Inputregister vom Computer gelesen. Den prinzipiellen Aufbau zeigt Abb. 37. Einer Meßkurve wurde dazu intern ein Bereich von 1024 Kanälen zugeordnet, der Kanalnummer i (1, ..., 1024) selbst der Spannungswert $(i-512) \cdot 50 \mu V$. Während das X-Dana ständig mit maximaler Geschwindigkeit, etwa 70 mal pro Sekunde, abgelesen wurde, wurde das Y-Dana nur abgelesen, wenn der X-Wert sich in einem Intervall $[(z - 50 - 10) \mu V, (z - 50 + 10) \mu V]$ mit $z \in \mathbb{Z}$ befand. Während der X-Wert sich durch ein solches Intervall bewegte, wurde das Y-Dana ständig abgelesen. Der Mittelwert der Y-Ablesungen wurde dann dem entsprechenden Kanal $i = z + 512$ zugeordnet. Bei der normalerweise benutzten Durchfahrgeschwindigkeit von 1 mV/10 s befand sich der X-Wert etwa 0.2 Sekunden in einem Intervall. In dieser Zeit wurden $0.2 \cdot 70 = 14$ Y-Werte abgelesen. Der Mittelwert der Y-Werte wurde gespeichert.

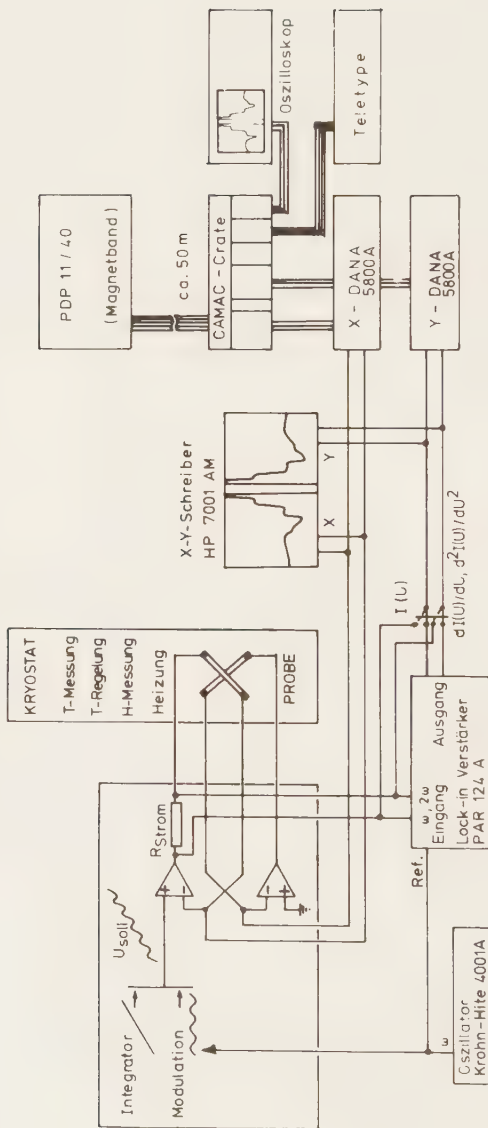


Abb. 37

Schematische Darstellung der Meßanordnung zur Messung der Kennlinie und ersten und zweiten Ableitung bei gleichzeitiger Datenaufnahme mit Computer.

III. Berechnung der Tunnelzustandsdichte von Blei

Da die Strukturen in der differentiellen Leitfähigkeit und damit auch bestrahlungsinduzierte Änderungen sowohl mit abnehmender Temperatur als auch bei supraleitender Gegenelektrode schärfer werden, wurden die Experimente stets bei der tiefsten, über längere Zeit stabil einstellbaren Temperatur durchgeführt. Bei dem letzten Bestrahlungsexperiment betrug die Meßtemperatur 1.3 K. Die Meßgröße $\sigma_{\text{norm}}(U) = \sigma_S(U)/\sigma_N()$ ist demnach gegeben durch Gleichung 32. Zur Berechnung von $\alpha^2 F(\omega)$ von Blei wird jedoch die normierte Tunnelzustandsdichte von Blei $N_{\text{norm}}(U)$ benötigt. In der Literatur wird in fast allen Fällen der relativ geringe Einfluß der endlichen Meßtemperatur - Verbreiterung durch Fermifunktion - vernachlässigt und, falls die Gegenelektrode normalleitend war, näherungsweise die gemessene normierte differentielle Leitfähigkeit zur Berechnung von $\alpha^2 F(\omega)$ aus den Eliashberggleichungen für $T = 0$ verwendet. Eine genauere, jedoch wesentlich aufwendigere Methode der Auswertung ist möglich bei Mitnahme der vollen Temperaturabhängigkeit in den Eliashberggleichungen. Andererseits können jedoch, wenn es gelingt, aus den Meßkurven zunächst die Zustandsdichte von Blei zu berechnen, die Eliashberggleichungen für $T = 0$ ohne Näherung verwendet werden. Dazu ist Gleichung 32 als Integralgleichung für $N_{\text{pb}}(E)$ zu betrachten bzw., da σ_{norm} an diskreten Punkten durch die Messung gegeben ist und es genügt $N_{\text{pb}}(E)$ an Stützstellen zu kennen, nach Umwandlung des Integrals in eine Riemann-Summe, als lineares Gleichungssystem der Dimension n ($=$ Anzahl der Stützstellen ≈ 300). Dabei kann die Divergenz in der BCS-Zustandsdichte des Aluminiums durch Variablentransformation zum Verschwinden gebracht werden. Bei den hier verwendeten Bedingungen - sehr tiefe Temperatur ($T/T_c(P_b) \ll 1$, $kT \ll \Delta_{\text{pb}} = 1.36$ meV) und kleine Energielücke von Aluminium ($\Delta_{\text{Al}} \approx 0.2$ meV) - kann die Tunnelzustandsdichte von Blei iterativ direkt aus den Meßkurven berechnet werden. Dazu wird, beginnend bei $U = 0$, der Strom durch den Tunnelkontakt $I_{\text{ss}}(U)$ berechnet und das jeweils letzte Glied der Riemann-Summe, das $N_{\text{pb}}(eU - \Delta_{\text{Al}})$ als Faktor enthält, so bestimmt, daß die berechnete Leitfähigkeit (Differenzenquotient) der gemessenen gleich wird. Zur Berechnung des Stromes tragen jedoch auch thermisch besetzte Zustände (siehe Abb. 27) oberhalb der Fermienergie von Aluminium bei, denen im Blei leere Zustände $N_{\text{pb}}(E)$ mit $E \leq eU + \Delta_{\text{Al}}$ gegenüberliegen. Da in diesem Bereich N_{pb} durch die zuvor geschilderte sukzessive Berechnung noch nicht bestimmt ist, wird hierfür näherungsweise $\sigma(E)$ anstelle von $N_{\text{pb}}(E)$ verwendet. Der dadurch gemachte Fehler ist wegen der bereits sehr kleinen Fermifunktion im Aluminium gering. Er kann

praktisch vollständig eliminiert werden durch iterative Wiederholung des vollständigen Berechnungsverfahrens, wobei nun zur Berechnung von $N_{pb}^{(n)}(U)$ jeweils im Bereich $E > eU + \Delta_{A1}$ die Werte von $N_{pb}^{(n-1)}(E)$ eingesetzt werden. Bereits bei $n = 3$ ist die Änderung gegenüber $n = 2$ kleiner als 10^{-5} .

D. ERGEBNISSE UND DISKUSSION

I. Der spezifische Widerstand

Die bestrahlungsinduzierte size-effect korrigierte Restwiderstandszunahme der Bleifilme, jeweils gemessen zwischen den Tunnelkontakten 2 und 3, zeigt Abb. 38. Beim zweiten und dritten Bestrahlungsexperiment sind jeweils nur die Endpunkte der verschiedenen Bestrahlungsdosen für jede Probe eingezeichnet. Eine Widerstandsmessung oberhalb T_c wurde vermieden, da die dazu notwendige Temperaturerhöhung schon zu einer Änderung der Defektstruktur geführt hätte (Stufe II). Gleichfalls erwies es sich als ungeeignet, bei tiefer Temperatur (2 K bzw. 1.3 K) den normalleitenden Widerstand durch Anlegen eines überkritischen Magnetfeldes zu messen, da beim Ausschalten des Feldes magnetischer Fluß eingefroren blieb, der zu einer deutlichen Abschwächung der Strukturen in den supraleitenden Tunnelspektren führte. Da beim ersten und zweiten Bestrahlungsexperiment die gleiche Projektilenergie verwendet wurde (25 MeV), sollten die dazugehörigen Meßpunkte auf einer gemeinsamen Kurve liegen. Der beobachtete Dosisunterschied von etwa 35 % ist deutlich größer als der experimentelle Fehler (± 10 %). Dies kann durch eine geringfügig höhere Bestrahlungstemperatur, verursacht durch größere Strahlströme, erklärt werden. Aufgrund der sehr tief liegenden Erholungsstufe I von Blei hat dies starke Auswirkungen auf die Defektproduktion. Dagegen wurde im 3. Bestrahlungsexperiment (Projektilenergie 10 MeV) eine vergleichbare Restwiderstandsänderung bereits bei Dosen erreicht, die um den Faktor 2.5 kleiner sind, was genau der Energieabhängigkeit des Rutherford-Wirkungsquerschnittes entspricht. In allen Fällen ist eine Abnahme der Defektproduktion, d.h. der Steigung $d \Delta \rho_B / d\Phi$ mit zunehmender Dosis zu erkennen. Dies deutet auf beginnende Sättigung der Defektkonzentration hin. Der aus Hochdosisbestrahlungsexperimenten mit 25 MeV Sauerstoffionen (maximale Dosis $4.1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) extrapolierte Sättigungswert des spezifischen Widerstandes ⁴³⁾ beträgt $1,25 \mu\Omega \text{ cm}$. Bei Implantationsexperimenten mit Zn-Ionen unterhalb 8 K wurde ein Sättigungswert von $2,25 \mu\Omega \text{ cm}$ extrapoliert ⁸⁴⁾, jedoch scheint dieser nur für durch Fremdatome stabilisierte Defekte zu gelten. Die maximal erreichte Defektkonzentration entspricht damit etwa 70 % der Sättigungskonzentration. Eine weitere Erhöhung der Bestrahlungsdosis war nicht wünschenswert, da dabei ein starkes Anwachsen der mittleren Größe der ZGA-Agglomerate und damit ein weniger stark ausgeprägtes Auftreten von resonanten Moden zu erwarten ist. Zusätzlich wurden bei höheren Dosen verstärkt Leckströme durch die Tunnelkontakte beobachtet, die sinnvolle

Messungen bei höheren Defektkonzentrationen nicht erlauben. In dieser Arbeit wird auf die verschiedenen Modelle und Mechanismen zur Defektproduktion nicht eingegangen. Der bestrahlungsinduzierte spezifische Widerstand wird nur als Maß für die sonst nur sehr indirekt zugängliche Defektproduktion verwendet. Eine Frenkeldefektkonzentration von 1000 ppm entspricht einer Zunahme des spezifischen Widerstandes um $1.35 \mu\Omega\text{cm}$.

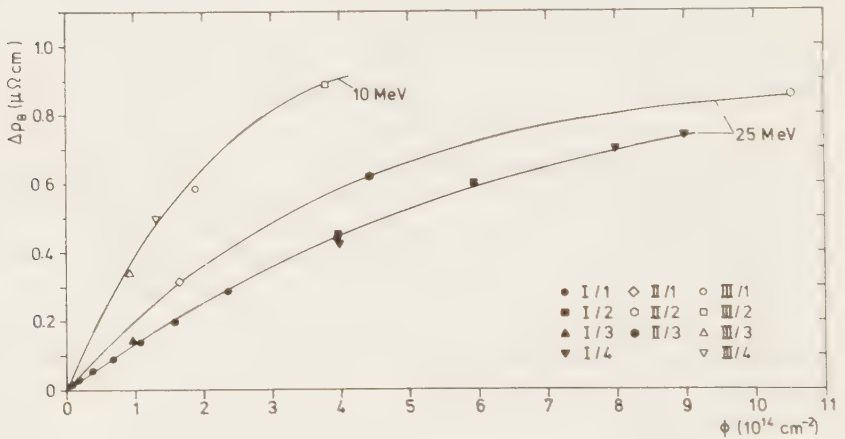


Abb. 38

Size-effect korrigierte Restwiderstandszunahme $\Delta\rho_B$ als Funktion der Bestrahlungsdosis. Eine Frenkel-Defekt-Konzentration von 1 0/00 bewirkt eine Widerstandszunahme von $1.35 \mu\Omega\text{cm}$.

II. Tunnelspektroskopie

1. Leistungsfähigkeit der Methode

Die Experimente von McMillan und Rowell an Blei gelten als herausragendes Beispiel für die Leistungsfähigkeit der supraleitenden Tunnelspektroskopie ³⁹⁾. Erstes Ziel war es deshalb, auch unter den, was elektronische Störungen anbetrifft, ungünstigen Bedingungen einer Experimentierhalle am Beschleuniger, eine vergleichbar große Meßgenauigkeit zu erreichen, um alle Details in der Tunnelzustandsdichte nachweisen zu können. Eine im Prinzip genauere Methode zur Bestimmung der Tunnelzustandsdichte von Blei bietet die von McMillan und Rowell angewandte Messung der differentiellen Leitfähigkeit eines Tunnelkontaktes, bei dem beide Elektroden aus Blei bestehen. Ihr Vorteil besteht in einem wesentlich verbesserten Signal zum Rauschverhältnis, da die Strukturen um mehr als einen Faktor 2 größer sind. Weiterhin brauchen bei der Entfaltung zur Berechnung der Tunnelzustandsdichte, wenn die Messung bei etwa 1 K erfolgte, aufgrund der großen Energielücke von Blei keine thermisch besetzten Zustände berücksichtigt zu werden. Dadurch entfällt das in C III geschilderte Iterationsverfahren. Wegen der wesentlich größeren Empfindlichkeit von Bleioxidtunnelbarrieren bei Bestrahlung hinsichtlich des Entstehens großer Leckströme ⁸⁵⁾ (siehe D IV) konnten jedoch für die hier untersuchte Fragestellung keine $\text{Pb-Pb}_{x\text{O}_y}\text{-Pb}$ Tunnelkontakte verwendet werden. Dennoch gelang es, zumindest beim 3. Bestrahlungsexperiment eine Genauigkeit in der Bestimmung der Tunnelzustandsdichte (siehe Abb. 48) zu erreichen, die der von McMillan und Rowell gleichkommt. Einen noch kritischeren Test stellen die bei der Inversion der Eliashberggleichungen berechneten Renormalisierungsfunktionen der Elektronenzustände im supraleitenden und im normalleitenden Zustand $Z_s(\omega)$ und $Z_n(\omega)$ (siehe Abb. 39 und 40) sowie die Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$ (Abb. 41) und die Paar-Selbstenergiefunktion $\Phi(\omega) = Z_s(\omega) \cdot \Delta(\omega)$ (Abb. 42) dar. Zur Erleichterung des Vergleiches mit den entsprechenden Ergebnissen von McMillan und Rowell (vgl. Abb. 23 - 29 in Ref. 39) sind diese im Anhang dargestellt. Obwohl natürlich auch in der Energielückenfunktion und in den Renormalisierungsfunktionen bei genauer Betrachtung kleine bestrahlungsinduzierte Effekte auftreten, werden sie im folgenden nicht weiter diskutiert, da es sich dabei nur um zwangsläufige Auswirkungen des zugrunde liegenden Bestrahlungseffektes handelt. Dieser ist das Auftreten neuer Strukturen in der Eliashbergfunktion $\alpha^2F(\omega)$.

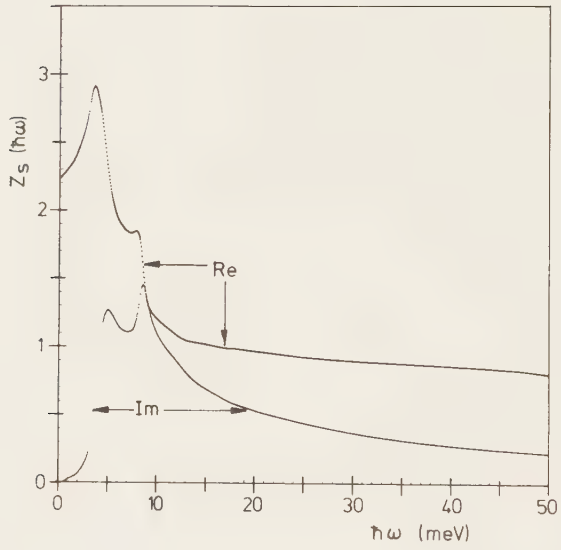


Abb. 39

Renormalisierungsfunktion von Blei im supraleitenden Zustand

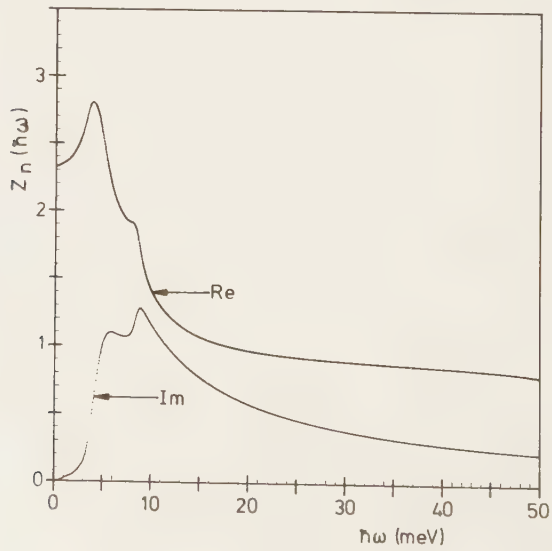


Abb. 40

Renormalisierungsfunktion von Blei im normalleitenden Zustand

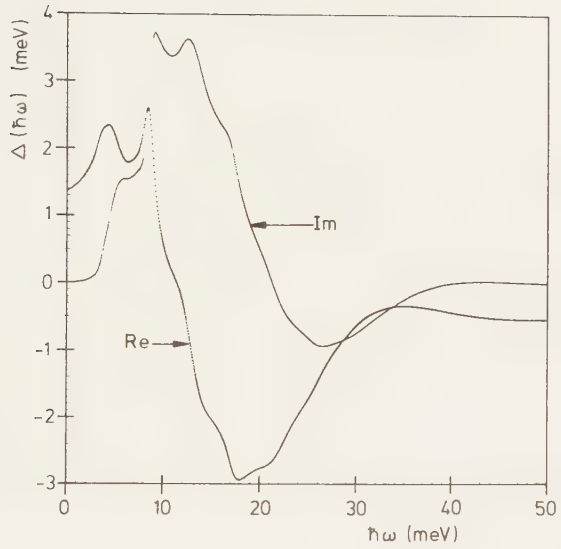


Abb. 41
Energilückenfunktion von Blei

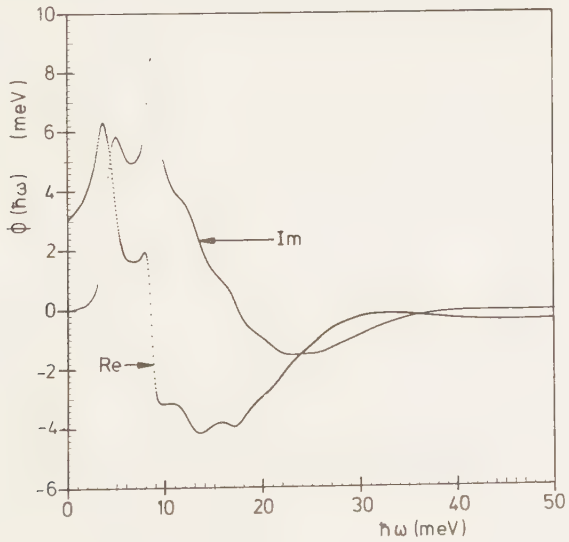


Abb. 42
Paar-Selbstenergiefunktion von Blei

2. Differentielle Leitfähigkeit, Tunnelzustandsdichte und Phononenstruktur

Wie bereits in B II 1.2 dargelegt, führt ein Peak im Phononenspektrum bei der Energie $\hbar\omega_0$ im Falle eines Supraleiters mit starker Elektron-Phonon-Wechselwirkung zu einem steilen Abfall in der Tunnelzustandsdichte bei der Energie $eU = \hbar\omega_0 + \Delta_0$. Als Beispiel ist in Abb. 43a) der idealisierte Fall gezeigt, daß im Phononenspektrum von Blei bei $\hbar\omega_1 = 2$ meV und $\hbar\omega_2 = 2,6$ meV zusätzliche Peaks auftreten, deren Integral etwa jeweils $5 \cdot 10^{-3}$ des gesamten Phononenspektrums beträgt. Dadurch werden in der Tunnelzustandsdichte die in Abb. 43b) schematisch dargestellten zusätzlichen Strukturen bei den entsprechenden Energien hervorgerufen. Im Experiment kann man jedoch keine so deutlichen und ausgeprägten Effekte erwarten, da einerseits aufgrund der gleichzeitig vorhandenen verschiedenen Defektkonfigurationen mehrere zusätzliche Phononenmoden mit unterschiedlicher Energie, die sich sicher zum Teil auch überlagern werden, vorhanden sind. Andererseits ist die Gesamtintensität der durch Zwischengitteratome hervorgerufenen resonanten Moden bei maximaler Dosis etwa eine Größenordnung kleiner. Die gemessenen normierten differentiellen Leitfähigkeiten für eine typische Probe zeigt Abb. 44. Die dargestellten Kurven sind unmittelbar die Quotienten der gemessenen differentiellen Leitfähigkeiten im supraleitenden und normalleitenden Zustand, abgesehen von der Korrektur der bei Bestrahlung auftretenden Leckströme. Unter der Annahme Ohm'scher Leckströme, also einer additiven, von der am Tunnelkontakt anliegenden Spannung U unabhängigen Leitfähigkeit σ_{Leck} erhält man die normierte Tunnelleitfähigkeit σ_{norm} aus

$$\sigma_{\text{norm}}(eU) = \frac{\sigma_S(eU) - \sigma_{\text{Leck}}}{\sigma_N(eU) - \sigma_{\text{Leck}}} \quad (36)$$

wobei σ_S und σ_N die im supraleitenden bzw. normalleitenden Zustand gemessenen differentiellen Leitfähigkeiten sind. Die Größe der Leckströme wurde entweder aus der gemessenen Leitfähigkeit im supraleitenden Zustand bei $eU \ll \Delta_{\text{Pb}} - \Delta_{\text{Al}}$ bestimmt, da dort die Tunnelleitfähigkeit vernachlässigbar ist, oder aus der Größe der durch den longitudinalen Phononenpeak hervorgerufenen Struktur. Diese sollte wegen der geringen Defektkonzentration im Rahmen der Meßgenauigkeit konstant bleiben. Bei hohen Dosen betrugen die Leckströme bis zu 30 % des Gesamtstromes. Wie aus Abb. 44 ersichtlich ist, treten keine signifikanten Änderungen in der Form der beiden großen Stufen bei 4 und 8.5 meV auf, die dem transversalen und longitudinalen Phononenpeak zugeordnet werden. Bei genauer Betrachtung sind jedoch bestrahlungsinduzierte Strukturen auf dem steilen Abfall zwischen 1.5 meV und 3 meV zu erkennen. Dieser Bereich ist in vergrößertem Maßstab in Abb. 45

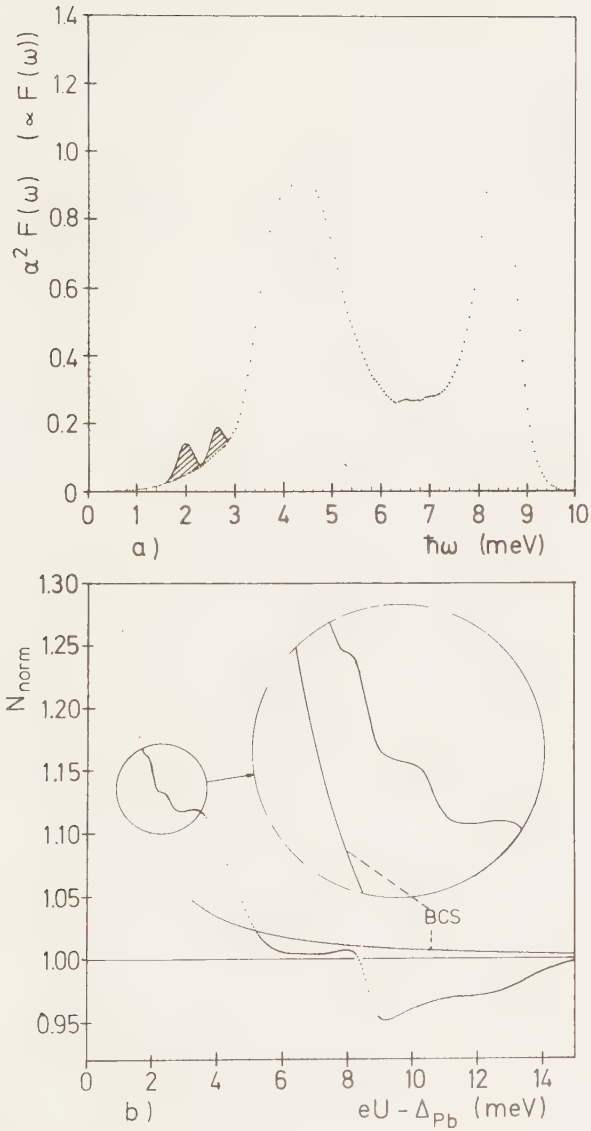


Abb. 43

Schematische Darstellung der Auswirkung zusätzlicher niederfrequenter Phononenmoden (a) auf die normierte Tunnelzustandsdichte von Blei (b)

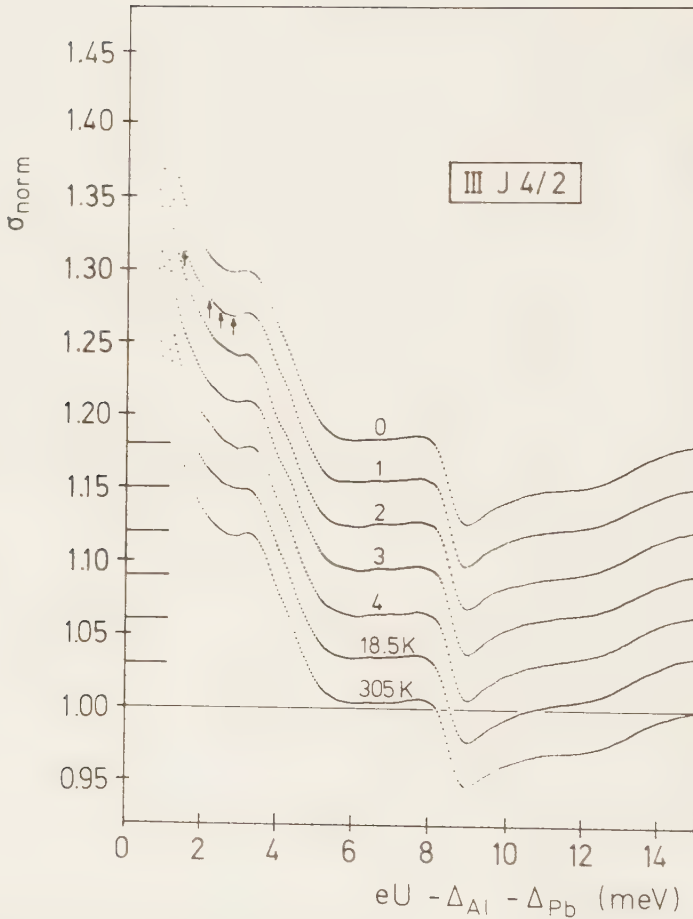


Abb. 44

Normierte differentielle Leitfähigkeit eines Al-Al₂O₃-Pb Tunnelkontaktes bei 1.3 K. 0: vor Bestrahlung; 1: Dosis $1.17 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, entspricht FD-Konzentration von 52 ppm; 2: $3.09 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, 119 ppm; 3: $6.15 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, 200 ppm; 4: $9.19 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, 274 ppm; nach Erholung bei 18.5 K und nach Erholung bei 305 K. Die Kurven sind um jeweils 0.03 nach oben versetzt, wobei die y-Skala für die unterste Kurve (305 K) gezeichnet ist. In Kurve 1 weisen die Pfeile exemplarisch auf bestrahlungsinduzierte Strukturen hin.

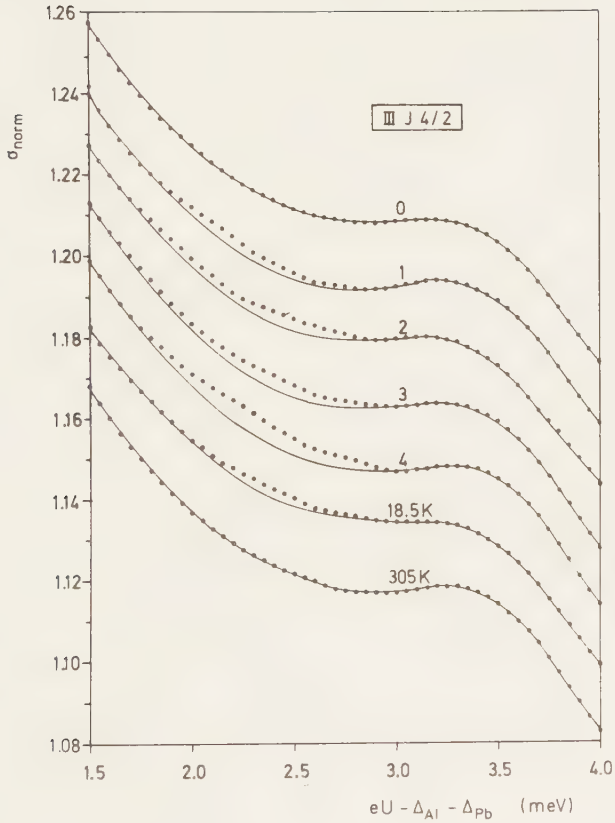


Abb. 45

Ausschnitt aus der normierten differentiellen Leitfähigkeit eines $\text{Al}-\text{Al}_x\text{O}_y-\text{Pb}$ Tunnelkontaktes bei 1.3 K. Kurvenbezeichnungen wie in Abb. 44. Die Kurven sind um 0.015 gegeneinander versetzt, wobei die y-Skala für die unterste Kurve (305 K) gilt.

dargestellt. Die durchgezogenen Linien entsprechen etwa der normierten differentiellen Leitfähigkeit, wie sie vor Bestrahlung bzw. nach Erholung bei 305 K beobachtet wird. Es zeigt sich eine ausgeprägte, jedoch nicht gleichförmige Zunahme von σ_{norm} zwischen etwa 1,5 und 3,5 meV. Dieser Effekt ist wesentlich deutlicher zu beobachten, wenn man σ_{norm} numerisch differenziert. Zur Demonstration zeigt Abb. 46 im oberen Teil σ_{norm} nach Bestrahlung mit einer Dosis von $1.2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (Kurve b). Zum Vergleich dazu sind auch die entsprechenden Kurven desselben Tunnelkontaktes vor Bestrahlung (a) und nach Bestrahlung und nach 10 Minuten langer Erholung bei 305 K (c) gezeigt. Die bestrahlungsinduzierten Strukturen in der Kurve b, die bei $\hbar\omega + \Delta_{\text{Al}} + \Delta_{\text{Pb}}$ zwischen 3 meV und 5 meV auftreten, sind gerade noch erkennbar (Pfeile). Sehr viel deutlicher sind sie jedoch im unteren Teil von Abb. 46 zu sehen, der die Ableitungen der drei Kurven zeigt. Wie bereits in B II 1.2 ausgeführt, entsprechen in diesem Bild negative Peaks (Täler), abgesehen von einer Verschärfung der Struktur durch die supraleitende Aluminiumelektrode, Phononenmoden in Blei. Demzufolge müssen die nur bei Bestrahlung auftretenden Täler (Pfeile) auf Schwingungsmoden von Gitterdefekten zurückgeführt werden. Auch in dieser sehr viel empfindlicheren Darstellung bleiben die beiden großen Strukturen bei 5.5 - 6 meV und 10 meV, von den Phononenmoden des ungestörten Gitters herrührend, im Rahmen der Meßgenauigkeit unverändert. Man kann jedoch bereits hier feststellen, daß der longitudinale Phononenpeak bei Bestrahlung um etwa 0.1 meV zu höheren Energien verschoben wird. Der niederenergetische Teil von Abb. 46b) (eingerahmter Bereich) ist für zwei Tunnelkontakte für verschiedene Bestrahlungsdosen und Ausheiltemperaturen in Abb. 47 dargestellt. Die durch Bestrahlung entstandenen zusätzlichen Strukturen sind in einem Fall exemplarisch mit Pfeilen versehen. Ihre Größe wächst mit der Dosis an. Gleichzeitig scheint sich die Lage der dafür verantwortlichen Schwingungsmoden zu höherer Energie zu verschieben. Dies könnte durch eine Zunahme der Größe der Zwischengitteratomagglomerate erklärt werden, wie in B I 4. diskutiert. Bei Erholung verschwinden die zusätzlichen Strukturen sehr schnell; bereits nach 10minütiger Ausheilung der Proben bei 18.5 K sind sie stark zurückgegangen, nach Ausheilung bei 305 K werden sie nicht mehr beobachtet. Dies zeigt, daß die gefundenen niederfrequenten Moden zu kleinen Zwischen-gitteratomagglomeraten gehören.

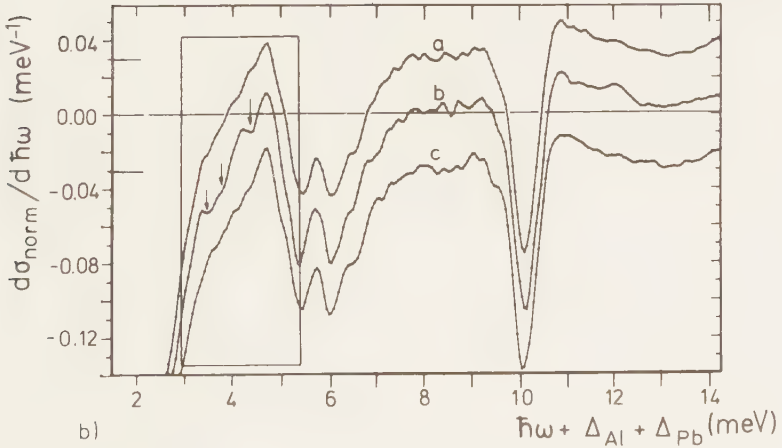
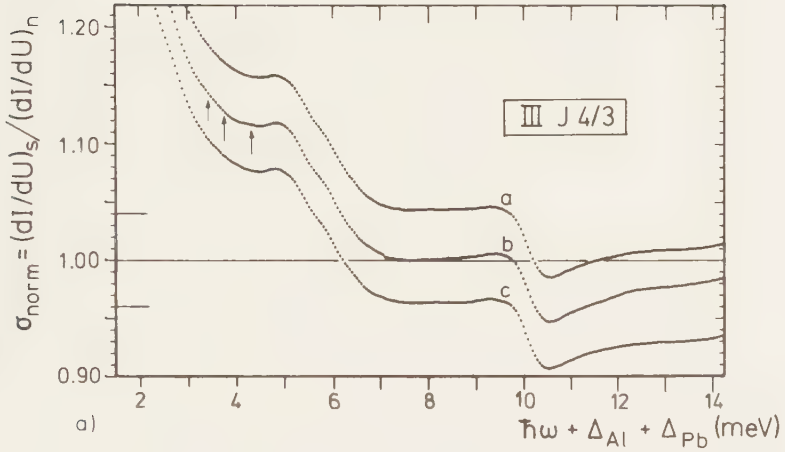


Abb. 46

- a) σ_{norm} nach Bestrahlung mit $1.2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 10 MeV Sauerstoffionen (Kurve b). Zum Vergleich dazu σ_{norm} desselben Tunnelkontaktes vor Bestrahlung (a) und nach Erholung bei 305 K (c).
- b) Ergebnis der numerischen Differentiation der 3 in a) gezeigten Kurven. Bestrahlungstemperatur etwa 2 K, Meßtemperatur 1.3 K. Die Pfeile weisen auf bestrahlungsinduzierte Strukturen hin.

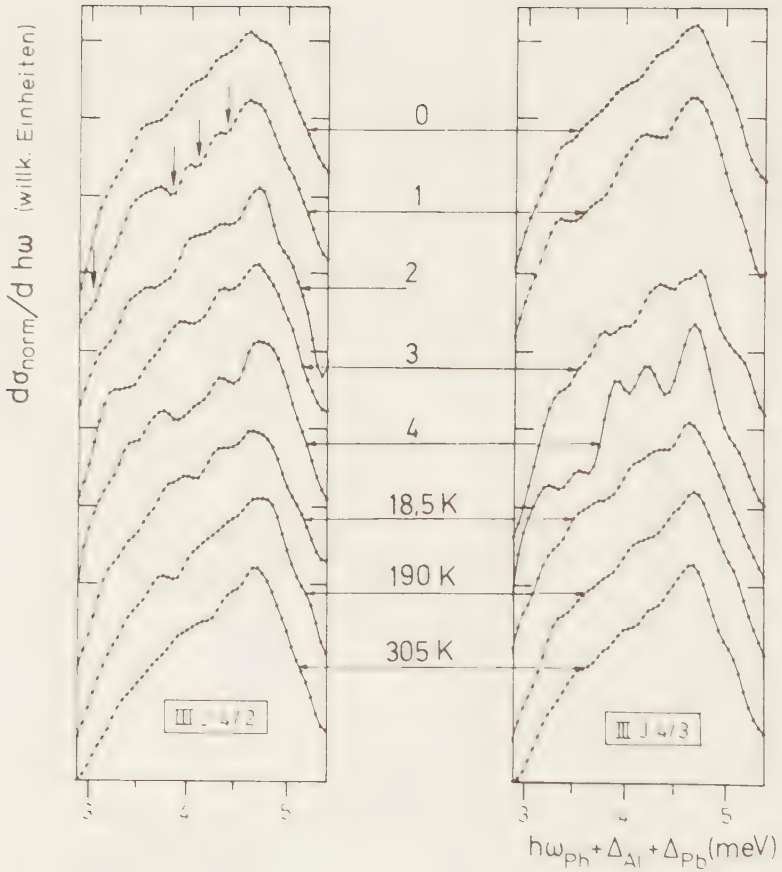


Abb. 47

Aus σ_{norm} numerisch gebildete 2. Ableitung eines $\text{Al}-\text{Al}_{x-y}\text{O}_y-\text{Pb}$ Tunnelkontaktes bei 1.3 K. Die Kennzeichnung der Kurven ist wie in Abb. 44. Zusätzlich ist die nach Erholung bei 190 K aufgenommene Kurve gezeigt. Die Pfeile weisen in einem Fall exemplarisch auf bestrahlungsinduzierte Täler hin, die niederfrequenten Peaks in $\alpha^2F(\omega)$ entsprechen.

Aufgrund der supraleitenden Gegenelektrode ist - wie bereits erwähnt - die gemessene normierte differentielle Leitfähigkeit nicht unmittelbar die Tunnelzustandsdichte von Blei, wie das bei einem Normalleiter-Isolator-Blei Tunnelkontakt bei tiefer Temperatur ($k_B T \ll \Delta_{Pb}$) der Fall wäre (abgesehen von thermischer Verschmierung). Die durch die BCS-Zustandsdichte von Aluminium hervorgerufene Verschärfung der Phononenstrukturen ist zwar vergleichsweise klein, würde jedoch ohne Entfaltung bei der Berechnung der Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ mit Hilfe des McMillan-Algorithmus zu einer signifikanten Verzerrung des Ergebnisses führen. Deshalb wurde mit dem in C III skizzierten Iterationsverfahren aus den gemessenen σ_{norm} -Daten zunächst die normierte Tunnelzustandsdichte N_{norm} von Blei berechnet. Das Ergebnis für einen typischen Tunnelkontakt, wiederum für verschiedene Bestrahlungsdosen und Erholungstemperaturen, zeigt Abb. 48, in die zusätzlich die BCS-Zustandsdichten eingezeichnet sind. Ein Vergleich mit Abb. 44 bestätigt, daß die Entfaltung tatsächlich zu einer geringfügigen Verbreiterung und Verringerung der gemessenen Struktur führt. In dieser Darstellung sind die bei niedrigen Energien durch Bestrahlungsdefekte verursachten Phononenmoden wegen des steilen Abfalls der Zustandsdichte unmittelbar praktisch nicht mehr zu erkennen. Da die Information über die Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ genau genommen bereits in der Abweichung der Tunnelzustandsdichte N_{norm} vom BCS-Verlauf N_{BCS} enthalten ist, wird in der supraleitenden Tunnelspektroskopie häufig die sogenannte Phononenstruktur

$$P(\hbar\omega) = N_{\text{norm}}/N_{\text{BCS}} - 1 \quad (37)$$

als die entscheidende experimentelle Größe diskutiert. Sie hat den Vorteil, daß die Singularität in der Zustandsdichte durch die Quotientenbildung eliminiert wird. $P(\hbar\omega)$ von Kontakt III J 4/2 in Abhängigkeit von Bestrahlungsdosis und Ausheiltemperatur zeigt Abb. 49. Der experimentell nicht zugängliche Bereich unterhalb etwa 1.2 meV wurde extrapoliert. Da in $P(\hbar\omega)$ die bei Bestrahlung auftretenden zusätzlichen Phononenstrukturen nicht mehr durch einen steilen Untergrund maskiert werden, sind sie nun auch trotz Herausfaltung der BCS-Zustandsdichte des Aluminiums zweifelsfrei nachweisbar. Die in Abb. 49 exemplarisch an der zu Dosis 1 gehörenden Kurve durch Pfeile gekennzeichneten, bestrahlungsinduzierten Strukturen entsprechen denen in Abb. 44.

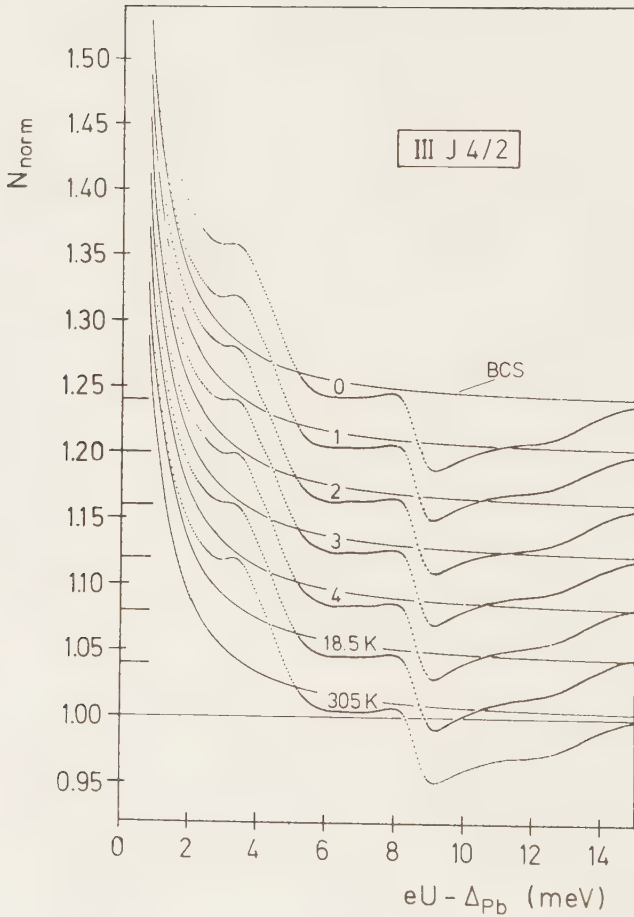


Abb. 48

Normierte Tunnelzustandsdichte von Blei. Die Kurven sind gekennzeichnet wie in Abb. 44 und vertikal um 0.04 gegeneinander versetzt, wobei die Y-Skala für die unterste Kurve (305 K) gezeichnet ist. Die entsprechende Größe von McMillan und Rowell zeigt Abb. A1 des Anhangs.

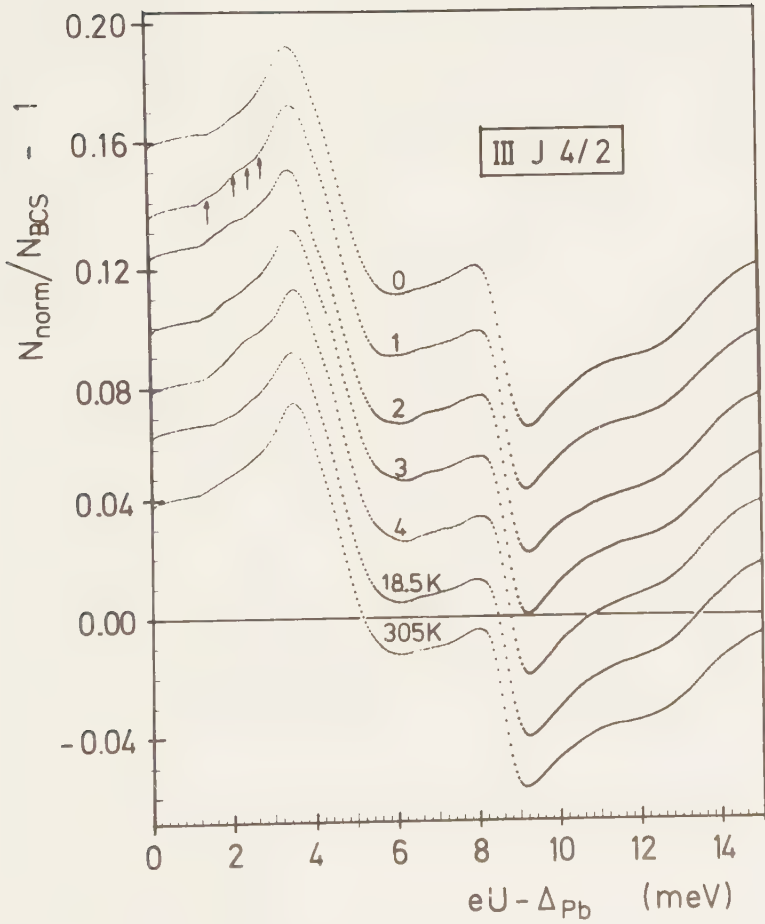


Abb. 49

Phononenstruktur von Blei. Die Kurven sind gekennzeichnet wie in Abb. 44 und vertikal gegeneinander um 0.02 versetzt, wobei die Y-Achse für die unterste Kurve (305 K) gilt. Die entsprechende Größe bei McMillan und Rowell zeigt Abb. A2 des Anhangs.

Wie die Abbildungen 44 bis 49 gezeigt haben, können bereits direkt in den experimentell zugänglichen Meßgrößen, bzw. nach geringfügiger Aufbereitung durch Computer, kleine zusätzliche Strukturen, die von Phononenmoden bestrahlungsinduzierte Defekte hervorgerufen werden, beobachtet werden. Sie treten auf bei einer Energie zwischen 1,5 meV und 3,5 meV.

3. Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$

Aus der normierten Tunnelzustandsdichte von Blei wurde mit dem von McMillan entwickelten Algorithmus zur Inversion der Eliashberggleichungen (siehe B II 3.) die Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ berechnet. Nach Bestrahlung können auch in $\alpha^2 F(\omega)$ die charakteristischen niederfrequenten Phononenmoden der Zwischengitteratomagglomerate beobachtet werden. Als Beispiel für den vollen Energiebereich zeigt Abb. 50 $\alpha^2 F(\omega)$ von Probe III J 4/2 vor Bestrahlung (a), nach Bestrahlung mit $1.2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (b) und nach Erholung bei 305 K (c). Da sich die supraleitende kritische Temperatur T_c sehr wenig bei Bestrahlung verändert - die T_c -Absenkung ist kleiner 0,1 K (siehe D III) - kann man erwarten, daß keine merklichen Änderungen in der Elektron-Phonon-Kopplung auftreten. Wie bereits in B II diskutiert, erweist sich der im allgemeinen energieabhängige Kopplungsparameter $\alpha(\omega)$ im Falle von Blei als konstant, da experimentell $\alpha^2 F(\omega)$ (aus Tunnelexperimenten) proportional $F(\omega)$ (aus Neutronenstreuung) gefunden wurde. Deshalb kann man sicherlich ausschließen, daß die beobachteten Peaks in $\alpha^2 F(\omega)$ nach Bestrahlung durch eine bestrahlungsinduzierte Zunahme der Elektron-Phonon-Kopplung in einem engen Energiebereich erfolgte, zumal die Form des transversalen und longitudinalen Phononenpeaks praktisch unverändert bleibt, was man aufgrund der geringen Defektkonzentration auch erwartet. Die durch Pfeile gekennzeichneten Phononenmoden entsprechen den schon in der normierten differentiellen Leitfähigkeit (Abb. 44 und 45), in deren Ableitung (Abb. 47) und in der Phononenstruktur (Abb. 49) beobachteten bestrahlungsinduzierten Strukturen. Wie Abb. 50 zeigt, treten wesentliche Änderungen in $\alpha^2 F(\omega)$ bei Bestrahlung nur im niederenergetischen Bereich ($< 3.5 \text{ meV}$) auf. Dieser Teil von $\alpha^2 F(\omega)$ ist deshalb in größerem Maßstab für mehrere Proben nach verschiedenen Bestrahlungsdosen und Ausheiltemperaturen in Abb. 51 und 52 dargestellt. Man erkennt, daß in allen Fällen $\alpha^2 F(\omega)$ vor Bestrahlung und nach Erholung bei 305 K einen glatten Verlauf in diesem Energiebereich aufweist. Bei Bestrahlung treten stets zusätzliche, teilweise überlappende Peaks auf, deren Intensität mit der Dosis zunimmt und deren Lage sich zu höheren Energien verschiebt. Die starke Abnahme dieser Peaks nach Er-

holung bei nur 18,5 K zeigt eindeutig, daß sie von Zwischengitteratomen oder kleinen Zwischengitteratomagglomeraten hervorgerufen werden, da nur diese in diesem Temperaturbereich beweglich sind. Der in Abb. 51 und 52 zur Verdeutlichung ebenfalls eingezeichnete Untergrund wurde aus den soweit erkennbar unbeeinflußt bleibenden Bereichen unterhalb 1.4 meV und oberhalb 3.2 meV abgeschätzt. Diese Untergrundlinien sind nicht vollkommen identisch, da sich die Ungewißheit in der Spannungsmessung, die etwa in der Größenordnung des halben Abstandes von zwei diskreten Meßpunkten ist ($\approx 20 - 30 \mu\text{V}$) auf die Steilheit der betrachteten niederenergetischen Flanke des transversalen Phononenpeaks

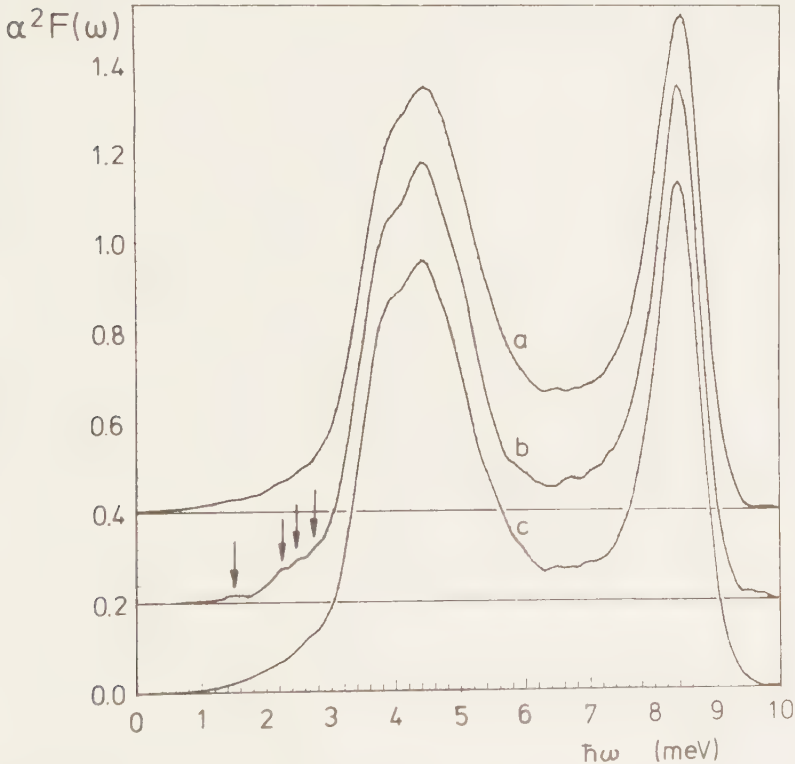


Abb. 50

Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ von Blei vor Bestrahlung (a), nach Bestrahlung mit $1.2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 10 MeV Sauerstoffionen (b) und nach Erholung bei 305 K (c). Die Kurven sind um 0.2 gegeneinander versetzt. Zum Vergleich ist das Ergebnis von McMillan und Rowell in Abb. A3 des Anhangs gezeigt.

auswirkt. Dieser Effekt wurde auf dem Computer durch Variation der Energielücke simuliert. Die geringfügige Variation der Peaklage für vergleichbare Bestrahlungsdosen bei verschiedenen Proben könnte auf Unterschiede in der Strahlintensität oder der thermischen Ankopplung der Probe zurückzuführen sein, da wegen der tiefliegenden Erholungsstufe I von Blei kleine Änderungen in den experimentellen Bedingungen bereits signifikanten Einfluß auf die Defektkonfiguration - Größe der Zwischengitteragglomerate - haben können. Dennoch lassen sich vier Energiebereiche feststellen, in denen sich die bestrahlungsinduzierten Phononenpeaks konzentrieren: bei etwa 1,5 meV, zwischen 1,8 meV und 2,2 meV, zwischen 2,4 meV und 2,6 meV und zwischen 2,8 meV und 3,2 meV. Bei großen Bestrahlungsdosen ($> 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) liegt die Hauptintensität der Zwischengitteratommoden zwischen etwa 2,5 meV und 3 meV. Die integrale, absolute Intensität der nur bei Bestrahlung auftretenden Phononen kann aufgrund der Unsicherheit des jeweiligen Untergrundes nur relativ ungenau bestimmt werden. Für einen Vergleich mit theoretisch berechneten Intensitäten ist auch noch von Bedeutung, inwieweit die nächsten Nachbarn eines Zwischengitteratoms an dessen charakteristischen Schwingungsmoden teilnehmen. Zeller berechnete, daß die Nachbaratome zu etwa je der Hälfte ihrer Intensität mit den Frequenzen der resonanten Moden des Zwischengitteratoms und des ungestörten Gitters schwingen⁶⁶⁾. Dadurch ergibt sich bei 12 nächsten Nachbarn im fcc-Gitter ein "Verstärkungsfaktor" für die Intensität der niederfrequenten Moden von $1 + 12 \cdot 0.5 = 7$. Trotz dieser Annahme ist die aus $\alpha^2 F(\omega)$ abgeschätzte integrale Intensität der resonanten Schwingungsmoden bei Dosen von etwa 10^{14} cm^{-2} etwa einen Faktor 3 zu groß. Diese Diskrepanz wächst bei niedrigeren Dosen (10^{13} cm^{-2}) auf einen Faktor zwischen 5 und 8 an. Dies könnte auf eine durch Diffusion erhöhte Konzentration von Zwischengitteratomen in der Nähe der der Tunnelbarriere zugewandten Bleioberfläche zurückzuführen sein. Zum Vergleich der energetischen Lage der resonanten Moden mit den für Kupfer gemachten theoretischen Voraussagen erscheint es geeignet, die Energie auf die maximale Energie des Phononenspektrums des ungestörten Gitters zu normieren. Im Falle von Einzel-Zwischengitteratomen und Doppel-Zwischengitteratomen wurden bei Verwendung der in B I 2.2 beschriebenen Potentiale (angepaßt für Kupfer) die in Tabelle 5 aufgelisteten Peaklagen berechnet. Die daraus für Blei ermittelten Energien sind ebenfalls eingetragen. In Anbetracht der beträchtlichen Schwankungen des theoretischen Ergebnisses bei Verwendung verschiedener Potentiale und der Vielfalt der möglichen Defektkonfigurationen erscheint eine direkte Zuordnung der beobachteten Schwingungsmoden nicht sinnvoll, obwohl sie im erwarteten Energiebereich liegen.

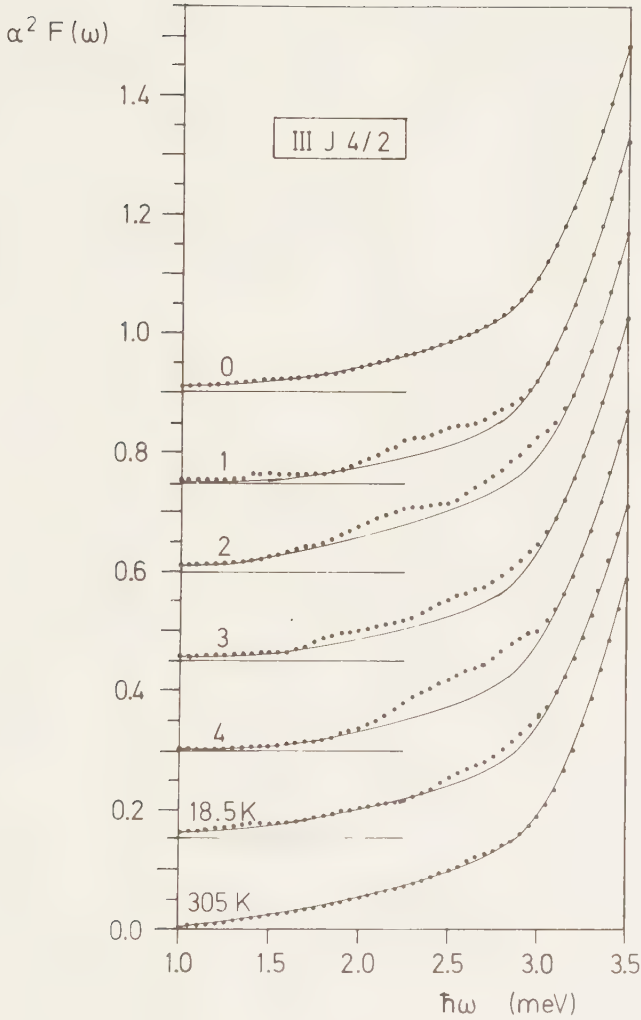


Abb. 51

Niederenergetischer Bereich von $\alpha^2 F(\omega)$ von Blei. Die Kurven sind gekennzeichnet wie in Abb. 44 und vertikal um 0.15 gegeneinander versetzt, wobei die Y-Skala für die unterste Kurve (305 K) gilt.

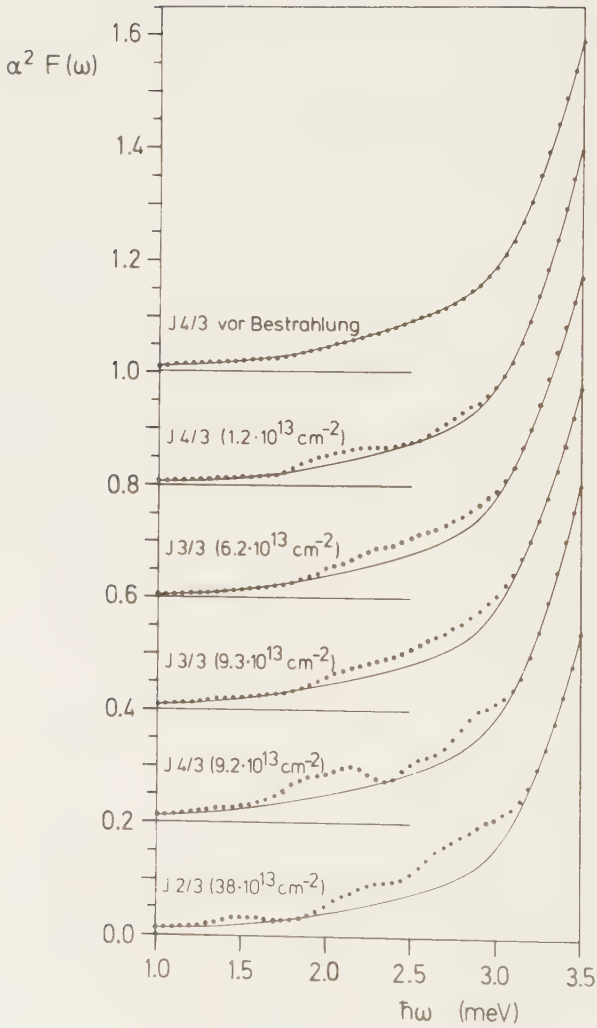


Abb. 52

Niederenergetischer Bereich von $\alpha^2 F(\omega)$ von Blei für verschiedene Tunnelkontakte des 3. Bestrahlungsexperiments vor Bestrahlung bzw. nach Bestrahlung mit den angegebenen Dosen. Die Kurven sind um 0.20 gegeneinander versetzt.

Bei höheren Dosen wird außerdem stets eine Verschiebung des longitudinalen Phononenpeaks um etwa 0.1 meV zu höheren Energien beobachtet. Dies könnte durch den berechneten, insbesondere im Falle des Doppel-Zwischengitteratoms besonders großen, scharfen Peak in der Nähe von $\hbar\omega_{\max}$ erklärt werden.

Die gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment stützt die bereits vorher gemachte Behauptung, daß die nach Bestrahlung bei tiefer Temperatur gefundenen niederfrequenten Peaks in $\alpha^2 F(\omega)$ von den resonanten Schwingungsmoden kleiner Zwischengitteratom-Agglomerate hervorgerufen werden.

Tabelle 5

Berechnete Lage der resonanten Phononenmoden ($\hbar\omega_{\max}(\text{Pb}) = 9.3 \text{ meV}$).

Potential	Einzel-ZGA		Doppel-ZGA	
	$\frac{\hbar\omega}{\hbar\omega_{\max}}(\text{Cu})$	$\frac{\hbar\omega}{\text{meV}}(\text{Pb})$	$\frac{\hbar\omega}{\hbar\omega_{\max}}(\text{Cu})$	$\frac{\hbar\omega}{\text{meV}}(\text{Pb})$
Morse	0.12	1.12	0.07	0.65
	0.21	1.95	0.13	1.21
	0.30	2.79	0.29	2.70
			0.37	3.44
			≤ 1	9.0
Born-Mayer	0.14	1.30	0.01	0.09
	0.19	1.77	0.12	1.12
	0.23	2.14	0.22	2.05
	≤ 1	9.0	0.29	2.70
modifi- ziertes	0.19	1.77		
	0.26	2.42		
Morse	0.32	2.98		

4. Weitere Ergebnisse der Tunnelspektroskopie

Die Größe der Energielücke von Blei bei 1.3 K wurde zu 1.36 meV ermittelt. Daraus folgt erhält man $2\Delta_{\text{Pb}}/k_B T_C = 4.38$ in Übereinstimmung mit anderen Experimenten. Bei Verwendung dieses Wertes für Δ_{Pb} als Eingabegröße des McMillan-Programmes weichen nach $(n,m) = (8,8)$ Iterationen (siehe Abb. 28) die gemessene und die berechnete Tunnelzustandsdichte um weniger als 10^{-3} voneinander ab. Dies entspricht etwa dem Durchmesser der Punkte in Abb. 48. Für Aluminium betrug die Energielücke bei 1.3 K 0.2 meV, was gut einem BCS-Supraleiter mit einem T_C von 1.8 K bis 2 K entspricht. Mit den berechneten Eliashbergfunktionen $\alpha^2 F(\omega)$ erhält man für

$$\int_0^{\omega_{\max}} \alpha^2 F(\omega) d\omega = (3.58 \pm 0.09) \text{ meV}$$

$$\lambda = 2 \int_0^{\omega_{\max}} \frac{\alpha^2 F(\omega)}{\omega} d\omega = 1.41 \pm 0.04 \quad (38)$$

$$\bar{\omega} = \frac{\int_0^{\omega_{\max}} \alpha^2 F(\omega) \cdot \omega d\omega}{\int_0^{\omega_{\max}} \alpha^2 F(\omega) d\omega} = (5.85 \pm 0.24) \text{ meV}$$

$$\langle \omega \rangle = \frac{\int_0^{\omega_{\max}} \alpha^2 F(\omega) d\omega}{\int_0^{\omega_{\max}} \alpha^2 F(\omega) \omega^{-1} d\omega} = (5.10 \pm 0.10) \text{ meV}$$

und $\mu^* = 0.14 \pm 0.02$.

Im Vergleich mit den Ergebnisse von McMillan und Rowell erscheint λ etwas zu niedrig und μ^* etwas zu groß. Sie finden $\lambda = 1.5$ und $\mu^* = 0.12$. Dies könnte man mit den in dieser Arbeit gemessenen Daten leicht reproduzieren durch Eingabe einer etwas größeren Energielücke: 1.38 meV anstelle von 1.36 meV. Jedoch wird damit keine so gute Anpassung der berechneten Zustandsdichte an die gemessene erreicht. Obwohl die Form und die einzelnen Strukturen praktisch identisch sind, bleibt eine konstante Differenz bestehen. Tatsächlich verwenden McMillan und Rowell $\Delta_{\text{Pb}} = 1.397 \text{ meV}$, was jedoch bei $T_C = 7,2 \text{ K}$ zu dem unvernünftig hohen Wert $2\Delta_{\text{Pb}}/k_B T_C = 4,5$ führt.

Wie man aufgrund der geringen Defektkonzentration von kleiner 700 ppm erwartet, bleiben die genannten Größen im Rahmen der angegebenen Streuung konstant ohne systematische Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis. Die durch Bestrahlung erzeugten Defekte sind nach Art und vor allem Konzentration nicht vergleichbar mit den bei kalter Kondensation erreichten, die im Extremfall bis zum amorphen Zustand führt. Deshalb sind die hier geschilderten Ergebnisse nicht vergleichbar mit den Tunnelexperimenten von Bergmann und anderen an kalt kondensierten Bleifilmen⁸⁶⁻⁹⁰⁾.

5. Der Tunnelwiderstand

Da die mittlere Reichweite von 10 MeV bzw. 25 MeV Sauerstoffionen sehr viel größer ist als die Gesamtdicke des Tunnelkontaktes, werden auch in der Tunnelbarriere Bestrahlungsdefekte erzeugt. Dies führt überraschenderweise zunächst zu einem starken Anwachsen des asymptotischen Tunnelwiderstandes R_T - Widerstand bei $eU \gg \Delta$. Bei einer Dosis von etwa $7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (Energie 10 MeV) ist R_T auf das etwa 3-4fache des Ausgangswertes angestiegen. Mit zunehmender Dosis sinkt R_T wieder ab und erreicht bei etwa $4 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ wieder die Größenordnung des Ausgangswertes. Es zeigt sich, daß auch dieses Verhalten der Tunnelbarriere bei Verwendung verschiedener Projektilenergien E mit dem Wirkungsquerschnitt für die übertragene Energie, also mit $1/E$ skaliert. Dies bedeutet, daß die Änderung von R_T nur von der Dichte der Defekte in der Tunnelbarriere abhängt. Abb. 53 zeigt die Ergebnisse aller Experimente, wobei die Dosisachse 10 MeV Sauerstoffionen entspricht. Dosen bei einer Energie von 25 MeV wurden durch 2.5 dividiert.

Ein sehr ähnliches Verhalten wurde für den elektrischen Widerstand von Galliumarsenid nach Bestrahlung mit schnellen Neutronen bei etwa 60 °C von Coates und Mitchell⁹¹⁾ beobachtet. Bei sehr hochohmigen GaAs-Proben mit einem spezifischen Widerstand von $10^8 \Omega \text{ cm}$ finden sie eine maximale Zunahme um etwa einen Faktor 5 bei einer Neutronendosis von 10^{17} cm^{-2} . Die dadurch erzeugten Defektkonzentrationen sind von vergleichbarer Größenordnung wie sie bei einer Dosis von 10^{14} cm^{-2} 10 MeV Sauerstoffionen erreicht werden. Nach Durchlaufen eines Maximums nimmt der spezifische Widerstand bei hohen Dosen stark ab. Coates und Mitchell führen die anfängliche Widerstandszunahme auf den Einfang von Ladungsträgern an Gitterdefekten zurück. Dementsprechend nehmen sie an, daß lokal in

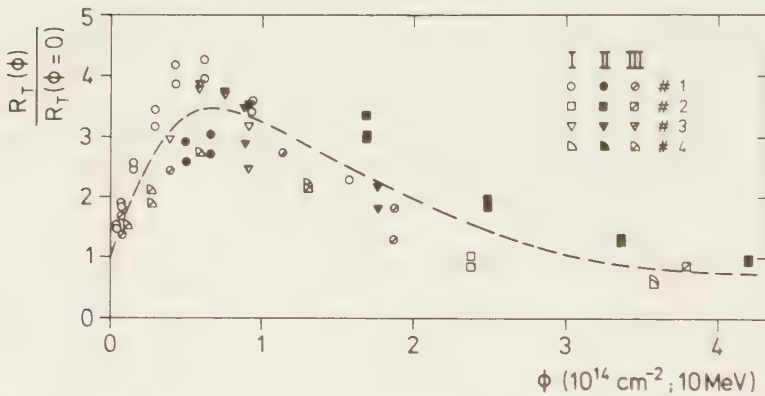


Abb. 53

Verhalten des asymptotischen Tunnelwiderstandes R_T von $\text{Al-Al}_x\text{O}_y$ -Pb Tunnelkontakten bei Bestrahlung. Die Dosisachse ist bezogen auf 10 MeV Sauerstoffionen. Die gestrichelte Linie ist zur Verdeutlichung der Abhängigkeit eingezeichnet.

den bei Bestrahlung erzeugten Verlagerungskaskaden Zustände im verbotenen Energieband entstehen. Die Widerstandsabnahme bei hohen Dosen kann in diesem Modell durch Hopping-Leitfähigkeit erklärt werden, die mit zunehmender Verringerung des mittleren Abstandes zwischen den Verlagerungskaskaden an Einfluß gewinnt. Tatsächlich beobachten sie nach hohen Dosen die für Hopping-Leitfähigkeit charakteristische $\exp(-c T^{1/4})$ -Abhängigkeit. Diese Vorstellungen werden auch dadurch unterstützt, daß nach Elektronenbestrahlung, die keine Verlagerungskaskaden, sondern einzelne Punktdefekte erzeugt, auch bei entsprechend hohen Dosen keine Widerstandsabnahme gefunden wird. Möglicherweise spielen ähnliche Mechanismen, wie hier für GaAs geschildert, für das Verhalten des Tunnelwiderstandes der Aluminiumoxidbarriere eine Rolle. In Bezug auf die in den vorhergehenden Abschnitten geschilderten bestrahlungsinduzierten niederfrequenten Moden in $\alpha^2 F(\omega)$ ist es bedeutsam, gewährleisten zu können, daß Defekte in der Tunnelbarriere keine zusätzlichen Strukturen in der gemessenen normierten differentiellen Leitfähigkeit hervorrufen. Dazu kann man folgendes

feststellen: Bei der Messung im normalleitenden Zustand (σ_N) treten in dem Spannungsbereich, in dem auch die supraleitende Leitfähigkeit gemessen werden kann ($U > 2.5$ mV), bei Bestrahlung keinerlei neue Strukturen auf. Diese wären besonders leicht festzustellen, da σ_N nahezu konstant ist. Einzig die sogenannte Nullpunktsanomalie - ein kleines Minimum in $\sigma_N(U)$ bei $U = 0$ - ändert seine Form. An den Rändern des Minimums bei $U = 0$ entstehen zusätzlich symmetrisch zwei kleine Maxima bei $U = \pm 0.7$ mV. Dieser Bereich wird jedoch bei der Bestimmung von σ_{norm} nicht verwendet, da aufgrund der Divergenz in der supraleitenden Leitfähigkeit diese erst oberhalb $U = 2.5$ mV genau genug gemessen werden kann. Demzufolge könnten die bestrahlungsinduzierten Strukturen in σ_{norm} im Bereich 3 mV bis 5 mV nur dann durch Barriereneffekte verursacht werden, wenn nach Bestrahlung das Übergangsmatrixelement (siehe B II 2.) in diesem Bereich von der Energie eU und dem supraleitenden bzw. normalleitenden Zustand der Elektroden abhinge, da weiterhin $\sigma_N = \sigma_S$ für $U \geq 30$ mV gemessen wird. Ein solches Verhalten kann jedoch ausgeschlossen werden, zumal in diesem Spannungsbereich bei praktisch allen Tunnelexperimenten für das Übergangsmatrixelement nur eine äußerst schwache Spannungsabhängigkeit und eine absolute Unabhängigkeit vom Zustand der Elektroden beobachtet wurde. Das bedeutet, man kann davon ausgehen, daß Bestrahlungsdefekte in der Tunnelbarriere keine Phononenstrukturen in $\alpha^2 F(\omega)$ vortäuschen.

III. Die supraleitende kritische Temperatur

Da der Einfluß von Gitterdefekten auf die supraleitende kritische Temperatur T_c von Blei nach Tieftemperaturbestrahlung (7 K) mit 25 MeV Sauerstoffionen von S. Klaumünzer⁴⁵⁾ und nach Implantation von Zinkionen (0.25 MeV) von Buckel et al.⁹²⁾ ausführlich untersucht wurde, wurde zum Vergleich mit diesen Ergebnissen beim zweiten Experiment (Energie 25 MeV) für einige Dosen T_c gemessen. Es wird, wie in Abb. 54 dargestellt, bei 10^{15} cm^{-2} eine Absenkung von 70 mK beobachtet. Der Hauptteil dieser Absenkung (50 - 60 mK) ist jedoch schon bei sehr kleinen Dosen ($< 2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) erreicht. Im Vergleich dazu findet Klaumünzer in diesem Bereich eine T_c -Abnahme von nur 15 mK. Der Unterschied zwischen diesen beiden unter sehr ähnlichen Bedingungen ausgeführten Experimenten besteht in der Dicke der Proben. Während Klaumünzer Filme von etwa 3 μm Dicke - die dünnen Aufdampftrandbereiche wurden sorgfältig mechanisch entfernt - verwendet hatte, waren die Bleifilme der Tunnelkontakte nur etwa 0.1 - 0.2 μm dick. Die dünneren Filme besaßen vor Bestrahlung eine um etwa 50 mK höhere kritische Temperatur, etwa 7,27 K im Vergleich zu 7,22 K. Beide Experimente wurden mit demselben Temperaturfühler, einem geeichten, gekapselten Germaniumwiderstand, durchgeführt. Erklärt werden kann dieses erhöhte T_c mit der Zunahme der mittleren Elektron-Phonon-Kopplung bei abnehmender freier Weglänge. Wie von Klaumünzer ausführlich diskutiert, ist die äußerst geringe Empfindlichkeit von T_c von Blei das Ergebnis von im wesentlichen zwei entgegengesetzten Effekten: Die bereits genannte Zunahme der Kopplung und damit von T_c bei abnehmender freier Weglänge der Elektronen und die T_c -absenkende Wirkung der Verschmierung der Anisotropie in der Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Bei dünnen polykristallinen Filmen (0,1 - 0,2 μm) ist die Anisotropie lokal zwar erhalten, die freie Weglänge ist jedoch, wie die size-effect Korrekturen zeigen, bereits drastisch verkürzt, so daß T_c erhöht ist. Bei hohen Dosen ist die freie Weglänge so klein, daß die Streuung der Elektronen an den Oberflächen nicht mehr ins Gewicht fällt. Dementsprechend ist T_c nach Bestrahlung mit 10^{15} cm^{-2} 25 MeV Sauerstoffionen (siehe Abb. 54) unabhängig von der Filmdicke. Diese Deutung ist in Übereinstimmung mit dem experimentellen Ergebnis von Buckel et al.⁹²⁾. Nach Implantation von Zn-Ionen in noch etwas dünnere Bleifilme (800 Å) stellen sie eine noch etwas stärkere T_c -Absenkung ($\approx 100 \text{ mK}$) fest.

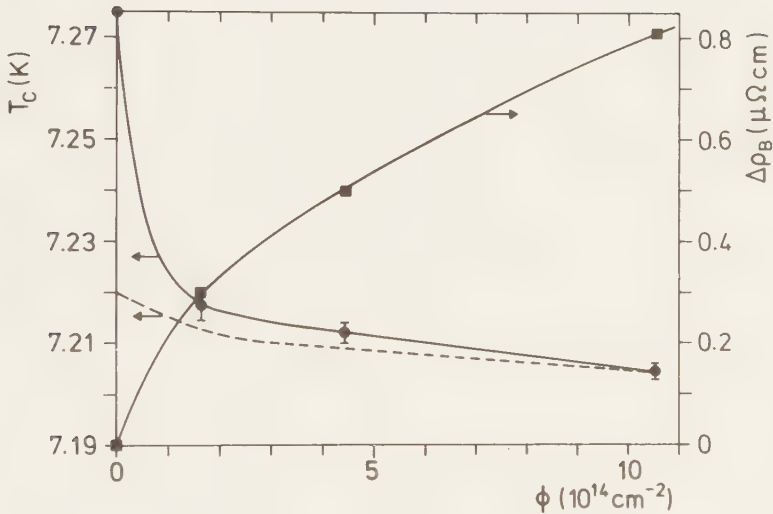


Abb. 54

Supraleitende kritische Temperatur T_C und Änderung des spezifischen Widerstandes $\Delta\rho_B$ von 0.1 μm - 0.2 μm dicken Bleifilmen in Abhängigkeit von der Dosis bei Bestrahlung mit 25 MeV Sauerstoffionen. Zum Vergleich dazu zeigt die gestrichelte Linie T_C von 3 μm dicken Filmen unter identischen Bedingungen ⁴⁵⁾.

Für die Interpretation der Ergebnisse der Tunnelexperimente ist die in jedem Falle nur sehr kleine T_C -Absenkung insofern von Bedeutung, als dadurch sichergestellt wird, daß bei Bestrahlung keine drastischen Veränderungen in der Elektron-Phonon-Wechselwirkung auftreten. Die in $\alpha^2 F(\omega)$ beobachteten niederfrequenten Peaks können dadurch zweifelsfrei einer bestrahlungsinduzierten Änderung des Phononenspektrums $F(\omega)$ zugeordnet werden.

IV. Andere Experimente zum direkten Nachweis niederfrequenter Phononenmoden von Zwischengitteratomen in fcc-Metallen

Die niederfrequenten Phononenmoden des $\langle 100 \rangle$ Hantel-Zwischengitteratoms sollten zu einer resonanzartigen Struktur in der Phononendispersion⁶⁵⁾ führen, die jedoch wegen der in reinen Metallen durch Bestrahlung erreichbaren geringen Konzentration von Frenkeldefekten sehr klein ist. Zwei Gruppen haben bisher versucht, dafür durch inelastische Neutronenstreuung einen Nachweis zu erbringen.

Nicklow et al.^{29,30)} haben einen Kupfereinkristall mit thermischen Neutronen bei 4,2 K bis zu einer Frenkeldefektkonzentration von 40 ppm und in einem zweiten Experiment bis 120 ppm bestrahlt (Oak-Ridge National Laboratory). Gemessen haben sie die Dispersionsrelation für den transversalen Phononenzweig in $\langle 001 \rangle$ -Richtung, da dieser besonders stark an die Librationsmode des Hantel-Zwischengitteratoms ankoppeln sollte. Überraschenderweise finden sie nach Bestrahlung eine ausgeprägte Struktur im gestreuten Neutronenpeak (siehe Abb. 55), die selbst nach Erholung bei 300 K nicht vollständig verschwunden ist. Es muß daher vermutet werden, daß sie nicht durch einzelne Zwischengitteratome hervorgerufen wird. Außerdem beobachten sie eine Verschiebung der Linienlage, die jedoch bei dem Experiment mit 40 ppm Frenkeldefekte viel größer ist als erwartet (etwa Faktor 15). Bei dem Experiment mit 120 ppm Frenkeldefekten ist die gemessene, relative Linienverschiebung in Übereinstimmung mit der Theorie (Abb. 56).

Böning et al.³¹⁾ haben am Forschungsreaktor München einen Aluminiumeinkristall bei 4,6 K mit schnellen Neutronen ($E > 0.1$ MeV) bis zu einer Frenkeldefektkonzentration von 810 ppm bestrahlt. Die Messung der Phononendispersion in $\langle 001 \rangle$ -Richtung (transversal) erfolgte im Institut Laue-Langevin in Grenoble. Da die Probe zwischen Bestrahlung und Messung bei tiefer Temperatur gehalten werden muß, um ein Ausheilen der Defekte zu verhindern, geschah der Transport von München nach Grenoble in einem Heliumkryostaten per Hubschrauber. Im Gegensatz zu Nicklow et al. bleibt die Form der Neutronenlinie auch bei Bestrahlung erhalten - abgesehen von einer sehr kleinen Verbreiterung - und kann gut durch Gaußkurven gefittet werden (Abb. 57). Allerdings ist die apparative Linienbreite sehr groß. Es tritt auch wieder eine relative Linienverschiebung auf, die jedoch, wie Abb. 58 zeigt, nahezu konstant ist und nicht dem theoretisch erwarteten resonanzartigen Verhalten folgt. Dieses Ergebnis entspricht einer Abnahme der Steigung der Dispersionskurve und damit einem allgemeinen weicher werden des Gitters ohne spezielle niederfrequente Moden. Die Größe der relativen Linienverschiebung ist in Übereinstimmung mit der nach Elektronenbestrahlung gefundenen Abnahme des

Schermodus C_{44} , wie das in Abb. 58 bei $\zeta = 0$ eingezeichnete Quadrat zeigt, wenn man mit der FD Konzentration skaliert⁹³⁾.

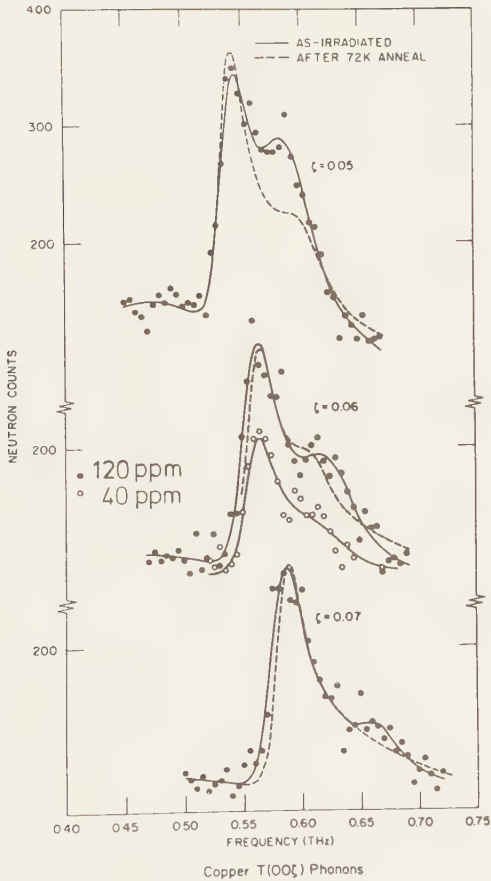


Abb. 55

Frequenzverteilung der von Kupfer bei 4 K gestreuten Neutronen nach Bestrahlung und nach Erholung bei 72 K für $q = (0,0,\xi) \cdot 2\pi/a$ (nach Ref. 29,30)

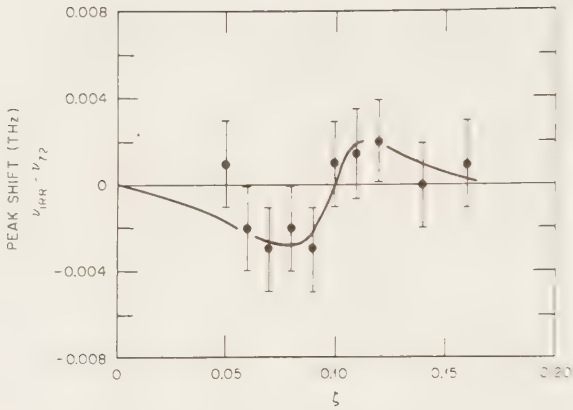


Abb. 56

Frequenzverschiebung der transversalen Phononen in bestrahltem Kupfer (120 ppm) bezogen auf die Werte nach Erholung bei 72 K. Die durchgezogene Kurve gibt den theoretisch erwarteten Verlauf wieder (nach Ref. 30).

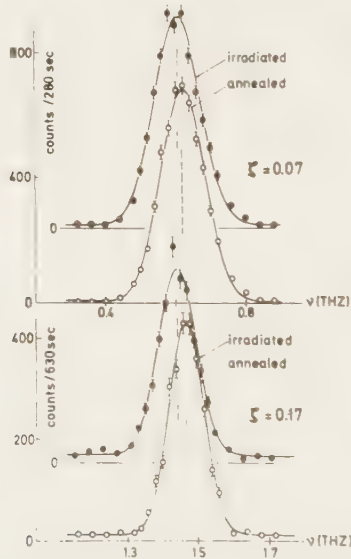


Abb. 57

Frequenzverteilung von an Aluminium bei 4 K gestreuter Neutronen nach Bestrahlung (810 ppm) und nach Erholung bei 300 K für $q = (0,0,\xi) \cdot 2\pi/a$ (nach Ref. 31).

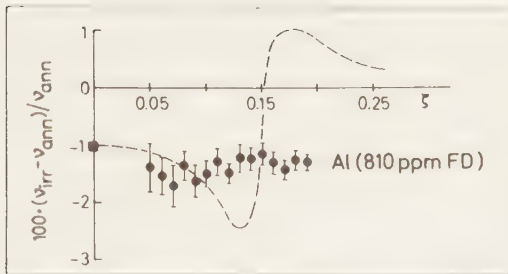


Abb. 58

Gemessene relative Frequenzverschiebung der transversalen Phononen in Aluminium nach Bestrahlung mit schnellen Neutronen bis zu einer Defektkonzentration von 810 ppm. Das volle Quadrat bei $\zeta = 0$ entspricht der skalierten Änderung des Schermoduls C_{44} ⁹³⁾ (nach Ref. 31). Die gestrichelte Kurve zeigt das theoretisch erwartete Verhalten.

Es besteht jedoch die Möglichkeit, daß der Versuch, niederfrequente Phononenmoden in Aluminium nachzuweisen, nur deshalb gescheitert ist, weil bei der vergleichsweise sehr hohen FD Konzentration von 810 ppm im wesentlichen nur relativ große Zwischengitteratom-Agglomerate vorhanden sind. Im Gegensatz zur Bestrahlung mit geladenen Teilchen ist bei Neutronenbestrahlung die mittlere übertragene Energie $\bar{T} = T_{\max}/2$ wegen des Fehlens einer langreichweitigen Wechselwirkung. Bei schnellen Neutronen mit $E > 0.1$ MeV ist demnach sogar im Falle des vergleichsweise leichten Aluminiums $\bar{T} > 7$ keV, also mehr als eine Größenordnung größer als im Falle der in dieser Arbeit verwendeten Projektil-Target-Kombination. Obwohl es aus Messungen der Huang-Streuung Hinweise gibt, daß im Falle von Aluminium die Zwischengitteratome in den Verlagerungskaskaden im wesentlichen zu Agglomeraten aus je drei Zwischengitteratomen relaxieren⁹⁴⁾, können sehr viel größere Agglomerate bei hohen Dosen nicht ausgeschlossen werden. Mit Sicherheit sind einzelne Zwischengitteratome vergleichsweise selten. Außerdem muß es selbst bei der Annahme, daß alle Zwischengitteratome in Dreifachagglomeraten vorliegen, fraglich erscheinen, ob die dann vorliegenden verschiedenen, nicht mehr entarteten niederfrequenten Moden bei der großen apparativen Linienbreite aufgelöst werden könnten. Wie Abb. 57 zeigt, ist die Halbwertsbreite der Gaußkurve etwa 0.15 THz. Dies entspricht 0.6 meV, während die Auflösung bei der Tunnelspektroskopie etwa 0.1 meV beträgt.

Dietsche und Wehr⁸⁵⁾ haben $\text{Pb-Pb}_{x,y}\text{O}_y$ -Pb Tunnelkontakte bei 4.6 K mit Reaktor-neutronen ($E > 0.1 \text{ MeV}$) bestrahlt. In diesem Fall muß wiederum eine extrem ungünstige Defektkonfiguration erwartet werden, da bei der Bestrahlungstemperatur freie Wanderung von Zwischengitteratomen möglich war und außerdem große Verlagerungskaskaden erzeugt werden. Für $E > 0.1 \text{ MeV}$ ist die im Mittel auf das primäre Rückstoßatom übertragene Energie $\bar{T} > 1 \text{ keV}$, also etwa eine Größenordnung größer als bei 10 MeV Sauerstoffionen. Im Falle der Neutronenbestrahlung werden damit praktisch alle Zwischengitteratome in Kaskaden gebildet, die mehr als 20 Zwischengitteratome enthalten, während bei der Ionenbestrahlung etwa die Hälfte in Kaskaden mit weniger als 10 Zwischengitteratomen entstehen. Hinzu kommt noch, daß sich unterhalb Stufe I sicherlich nicht alle Zwischengitteratome einer Kaskade zu einem einzigen Agglomerat zusammenballen, da man durch Ersetzungsstoßfolgen recht große Ausläufer der Verlagerungskaskaden erwarten kann. Bei Bestrahlung oberhalb Stufe I wird jedoch selbst bei gleichem Projektil die mittlere Zwischengitteratom-Agglomeratgröße sehr viel größer sein. Abgesehen von der ungünstigen Defektkonfiguration hatten die Tunnelkontakte von Dietsche und Wehr nach Bestrahlung mit Dosen, die einer FD-Konzentration von einigen 100 ppm entsprechen, Leckströme, die etwa 5 mal größer waren als der Tunnelstrom. Da sie außerdem bei der Messung eine Strommodulationstechnik verwendeten, wiesen die Meßkurven nach Bestrahlung so starke Verzerrungen auf, daß keine Entfaltung zur Bestimmung der Tunnelzustandsdichte und damit auch keine Berechnung von $\alpha^2 F(\omega)$ versucht wurde. Über das Auftreten niederfrequenter Defektschwingungsmoden konnten sie deshalb keinerlei Aussagen machen, obwohl das Experiment mit dieser Zielsetzung unternommen wurde.

E. ANHANG

Zur Erleichterung des Vergleichs der erreichten Auflösung und der Ergebnisse dieser Arbeit bezüglich der Tunnelspektroskopie an Blei sind hier die relevanten Größen des klassischen Experiments von McMillan und Rowell aus Ref. 39 gezeigt.

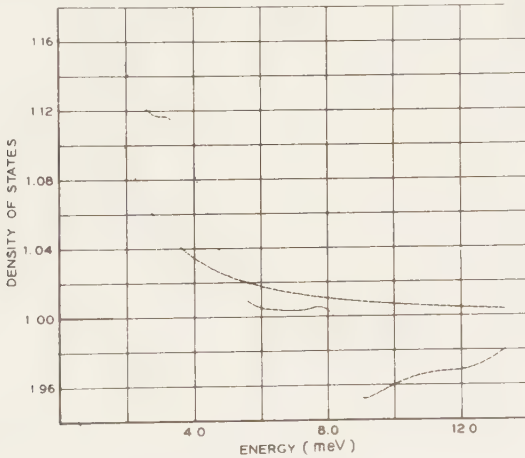


Abb. A1

Normierte Tunnelzustandsdichte von Blei als Funktion von $(E - \Delta_{Pb})$. Glatte Kurve: BCS-Zustandsdichte

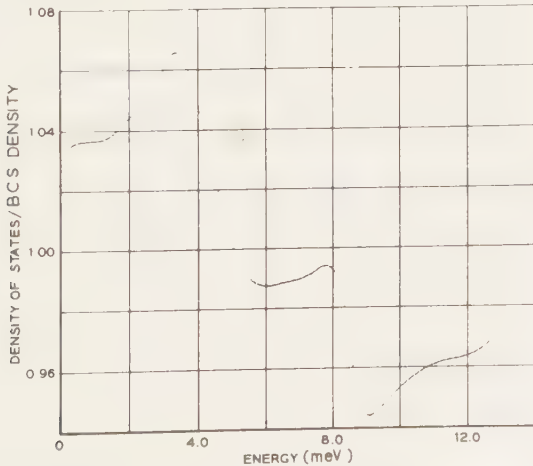


Abb. A2

Quotient aus Tunnelzustandsdichte von Blei und BCS-Zustandsdichte (= Phononenstruktur + 1)

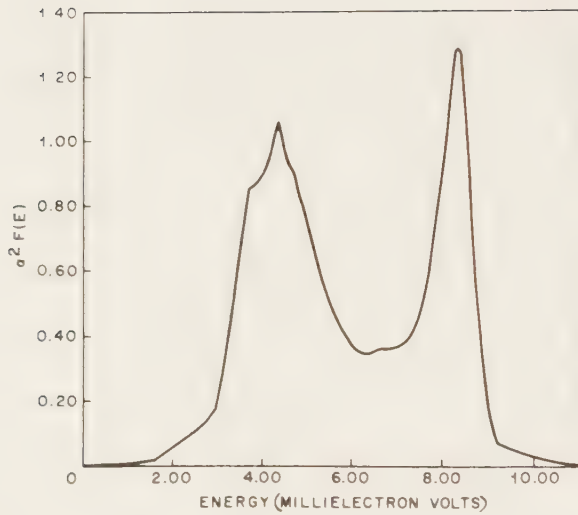


Abb. A3

Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(E)$ von Blei

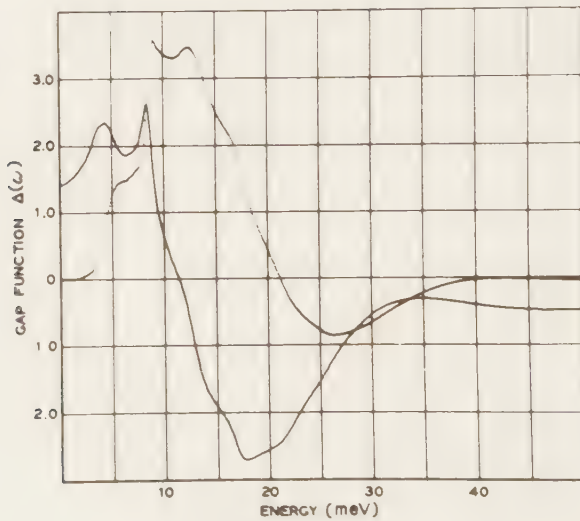


Abb. A4

Energielückenfunktion $\Delta(\omega)$ von Blei. Realteil: durchgezogene Linie, Imaginarteil: punktiert

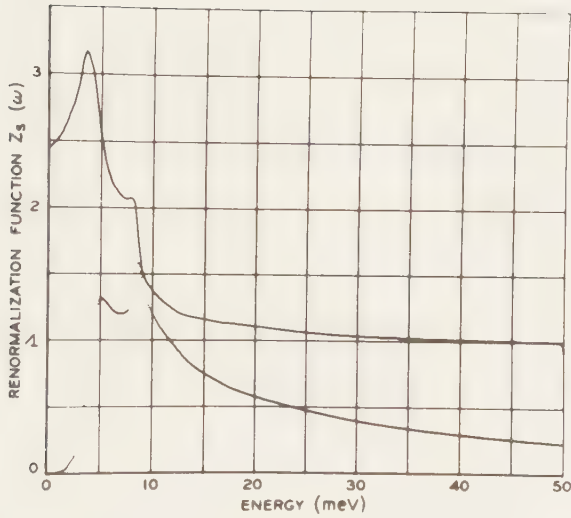


Abb. A5

Renormalisierungsfunktion von Blei im supraleitenden Zustand $Z_S(\omega)$. Realteil: durchgezogene Linie, Imaginarteil: punktiert

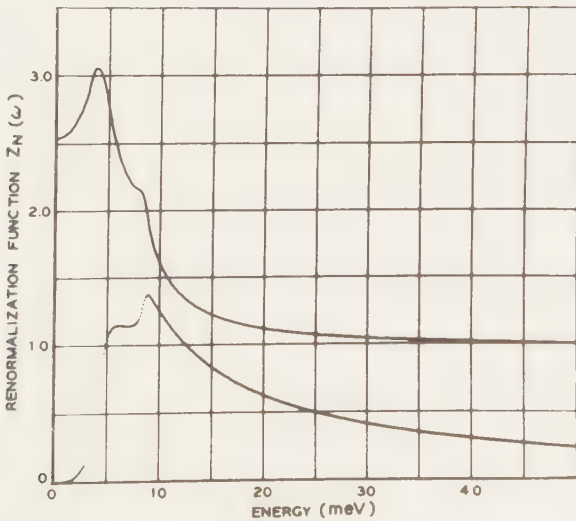


Abb. A6

Renormalisierungsfunktion von Blei in normalleitendem Zustand $Z_N(\omega)$. Realteil: durchgezogene Linie, Imaginarteil: punktiert

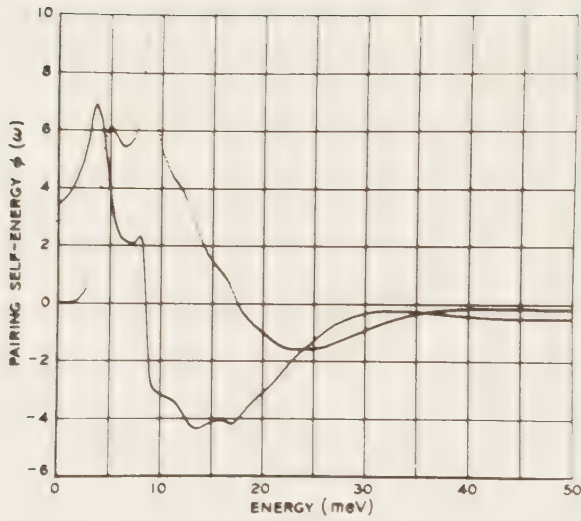


Abb. A7

Paar-Selbstenergiefunktion $\phi(\omega)$ von Blei. Realteil: durchgezogene Linie, Imaginärteil: punktiert

F. ZUSAMMENFASSUNG

In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluß von Gitterdefekten auf das Phononenspektrum des fcc-Metalls Blei untersucht. Als Meßmethode wird die supraleitende Tunnelspektroskopie verwendet. Die Theorie sagt für das Schwingungsverhalten von Zwischengitteratomen in $\langle 100 \rangle$ -Hantelkonfiguration niederfrequente Moden voraus. Es war das Ziel, die Auswirkung des dadurch veränderten Phononenspektrums auf die supraleitende Tunnelzustandsdichte von Blei nachzuweisen. Die dazu erstmalig durchgeführte Tieftemperaturbestrahlung von supraleitenden Tunnelkontakten mit schnellen Ionen - mittlere Reichweite sehr viel größer als die Dicke der Kontakte - zeigte bestrahlungsinduzierte niederenergetische Strukturen in der Eliashbergfunktion $\alpha^2F(\omega)$, die im Falle von Blei proportional zum Phononenspektrum $F(\omega)$ ist.

Im ersten Hauptteil der Arbeit (B) wird ein Überblick gegeben über die bekannten Eigenschaften von Punktdefekten in fcc-Metallen mit Betonung auf das von theoretischer Seite berechnete Schwingungsverhalten und über die Grundlagen der supraleitenden Tunnelspektroskopie. Ausführlich wird dabei die nach Tieftemperaturbestrahlung mit 10 MeV bzw. 25 MeV Sauerstoffionen zu erwartende Defektkonfiguration diskutiert. Ergebnis dieser Diskussion ist, daß im Falle von Blei selbst bei einer Bestrahlungstemperatur unterhalb der Erholungsstufe I aufgrund der niedrigen Aktivierungsenergie für freie Wanderung die Zwischengitteratome durch die lokal in Gitterschwingungen deponierte Energie bereits agglomerieren. Eine Abschätzung ergibt, daß die so erhaltenen Zwischengitteratomagglomerate im Durchschnitt nur wenige Zwischengitteratome groß sind.

Im experimentellen Teil (C) werden die Präparation der Tunnelkontakte, die Durchführung der Bestrahlungsexperimente und die in wesentlichen Punkten neuartige Methode zur direkten Messung der differentiellen Leitfähigkeit dI/dU bzw. der 2. Ableitung d^2I/dU^2 eines Tunnelkontaktes beschrieben. Die Geometrie der Proben - ein Bleifilm, der drei parallele Aluminiumfilme kreuzt - ermöglichte zusammen mit einem Strahlablenksystem die homogene Bestrahlung von zwei Al-Pb-Kreuzen einschließlich des dazwischen liegenden Teils des Bleifilms. Dadurch konnte dessen bestrahlungsinduzierte Restwiderstandsänderung gemessen werden, die ein Maß für die erreichte Konzentration von Frenkeldefekten darstellt. Um möglichst niedrige Bestrahlungstemperaturen (2 K) und damit kleine

Zwischengitteratomagglomerate zu erreichen, wurde für das dritte Experiment ein dafür optimierter Bestrahlungskryostat konstruiert, der gleichzeitig für die Messung der Tunnelcharakteristiken eine Temperatur von 1.3 K über mehrere Stunden hinweg gewährleistete. Da bei 1.3 K die aufgedampften Aluminiumfilme bereits supraleitend sind, wird durch die Divergenz in der supraleitenden Zustandsdichte des Aluminiums eine Verschärfung der von der Eliashbergfunktion von Blei hervorgerufenen Strukturen erreicht, wodurch die kleinen Bestrahlungseffekte deutlicher hervortreten. Der Nachteil dieser Methode besteht darin, daß zur Berechnung der normierten Tunnelzustandsdichte von Blei die supraleitende BCS-Zustandsdichte des Aluminiums aus der gemessenen differentiellen Leitfähigkeit herausgefaltet werden muß. Dies gelingt mit dem in C III dargestellten Iterationsverfahren, wobei gleichzeitig die aufgrund der endlichen Meßtemperatur vorhandene thermische Verbreiterung eliminiert wird, so daß für die Berechnung der Eliashbergfunktion mit Hilfe des McMillan-Algorithmus ohne weitere Näherung die Eliashberggleichungen für $T = 0$ verwendet werden können.

Bei der Darstellung und Diskussion der Ergebnisse (C) liegt der Schwerpunkt auf dem dritten Bestrahlungsexperiment, da bei diesem abgesehen von den verbesserten experimentellen Bedingungen auch eine on-line Datenerfassung und Speicherung per Computer realisiert wurde. Die ausführliche Darstellung repräsentativer, gemessener differentieller Leitfähigkeiten zeigt das Entstehen zusätzlicher niederenergetischer Strukturen bei Bestrahlung. Am deutlichsten sind diese nach numerischer Differentiation der normierten differentiellen Leitfähigkeit zu erkennen. Die berechnete Eliashbergfunktion $\alpha^2F(\omega)$ weist im Bereich zwischen 1.5 meV und 3.2 meV nach Bestrahlung zusätzliche Schwingungsmoden auf, die bereits nach Erholung bei 18.5 K wieder weitgehend verschwunden sind. Sie werden deshalb niederenergetischen, resonanten Schwingungsmoden von kleinen Zwischengitteratomagglomeraten zugeordnet. Nach Erholung bei 300 K werden keinerlei bestrahlungsinduzierte Strukturen mehr beobachtet. Die energetische Lage der Defektschwingungsmoden stimmt bei Normierung auf die maximale Phononenenergie mit den theoretischen Voraussagen überein, die mit phänomenologischen Potentialen gewonnen wurden, die an die Eigenschaften von Kupfer angepaßt waren. Weitere durch die supraleitende Tunnelspektroskopie meßbare bzw. berechenbare Größen wie die Energielücke im Einteilchenanregungsspektrum, Energielückenfunktion, Renormalisierungsfunktionen und Selbstenergiefunktion entsprechen den für Blei bekannten Resultaten und zeigen keine wesentlichen Änderungen bei Bestrahlung. Die Ergebnisse

dieser Arbeit werden mit anderen Experimenten zum direkten Nachweis nieder-energetischer, resonanter Schwingungsmoden in bestrahlten fcc-Metallen, insbesondere der inelastischen Neutronenstreuung, verglichen, die bislang keine eindeutigen Aussagen über deren Existenz liefern konnten.

3. LITERATURVERZEICHNIS

- 1) Vacancies and Interstitials in Metals, Hg. A. Seeger, D. Schuhmacher, W. Schilling und J. Diehl (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1970)
- 2) Proceedings of the International Conference on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Hg. M.T. Robinson, F.W. Young Jr. (Gatlinburg, USA, Okt. 1975, Conf. 751006)
- 3) Proceedings of the International Conference on the Properties of Atomic Defects in Metals (Argonne, Ill. USA, Oct. 1976), J. Nucl. Mat. 69/70 (1978)
- 4) Proceedings of the International Conference on Ion Beam Modification of Materials (Budapest, Ungarn, Sept. 1978) Rad. Eff. 47/48/50 (1980)
- 5) H. Ullmaier und W. Schilling, Phys. Mod. Mat. 1, 301 (1980)
- 6) Applied Suprconductivity Conference (Santa Fe, USA, Sept. 1980), IEEE Trans. Mag. MAG-17 (1981)
- 7) A.R. Sweedler, D.G. Schweitzer und G.W. Webb, Phys. Rev. Lett. 33, 168 (1974)
- 8) B. Besslein, G. Ischenko, S. Klaumünzer, H. Neumüller, K. Schmelz und H. Adrian, Phys. Lett. 53A, 49 (1978)
- 9) G. Ischenko, H. Adrian, S. Klaumünzer, M. Lehmann, P. Müller, H. Neumüller und W. Szymczak, Phys. Rev. Lett. 39, 43 (1977)
- 10) P. Müller, G. Ischenko, H. Adrian, J. Bieger, M. Lehmann und E.L. Haase, 3. Conference on Superconductivity in d- und f-Band Metals (La Jolla, USA, 1978) p. 369
- 11) H. Adrian, G. Hertel, J. Bieger, G. Saemann-Ischenko und L. Söldner, DPG-Frühjahrstagung, Münster 1981
- 12) G. Ischenko, S. Klaumünzer, H. Adrian und P. Müller, in Proceedings of the International Discussion Meeting on Radiation Effects on Superconductivity, Argonne, USA, Juni 1977, J. Nucl. Mat. 72, 212 (1978)
- 13) W. Schilling in Ref. 3, S. 465
- 14) R. Schindler, W. Frank, M. Rühle, A. Seeger und M. Wilkens in Ref. 3, S. 331

- 15) R.C. Birtcher, Y.N. Lwin und J.S. Koehler, Phys. Rev. Lett. 33, 899 (1974)
- 16) H. Schröder und W. Schilling, Rad. Eff. 30, 243 (1976)
- 17) W. Schilling und K. Sonnenberg, J. Phys. F: Metal Phys. 3, 322 (1973)
- 18) H.G. Hambold in Ref. 2, S. 268
- 19) P. Ehrhardt und W. Schilling, Phys. Rev. B8, 2604 (1974)
- 29) H.G. Hambold und D. Martinsen in Ref. 3, S. 644
- 21) A. Scholz und C. Lehmann, Phys. Rev. B6, 815 (1972)
- 22) P.H. Dederichs, C. Lehmann und A. Scholz, Phys. Rev. Lett. 31, 1130 (1973)
- 23) P.H. Dederichs in Ref. 2, S. 187
- 24) P.H. Dederichs, C. Lehmann, H.R. Schober, A. Scholz und R. Zeller
in Ref. 3, S. 176
- 25) J. Holder, A.V. Granato und L.E. Rehn, Phys. Rev. B10, 349 und 363 (1974)
- 26) G. Vogl, W. Mansel und W. Vogl, J. Phys. F: Metal Phys. 4, 2321 (1974)
- 27) G. Vogl und W. Mansel, in Ref. 2, S. 349
- 28) G. Vogl, W. Mansel, P.H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. 36, 1497 (1976)
- 29) R.M. Nicklow, R.R. Coltmann, F.W. Young and R.F. Wood, Phys. Rev. Lett. 35,
444 (1975)
- 30) R.M. Nicklow, W.P. Crummett und J.M. Williams, wird veröffentlicht
- 31) K. Böning, G.S. Bauer, H. Fenzel, R. Scherm und W. Kaiser, Phys. Rev. Lett.
38, 852 (1977)
- 32) R.F. Wood und M. Mostoller, Phys. Lett. 35, 45 (1975)
- 33) H.R. Schober, P.H. Dederichs und V.K. Tewary, Z. Physik B21, 255 (1975)
- 34) G.M. Eliashberg, JETP 11, 696 (1960)
- 35) Y. Nambu, Phys. Rev. 117, 648 (1960)

- 36) D.J. Scalapino, J.R. Schrieffer und J.W. Wilkins, Phys. Rev. 148, 263 (1966)
- 37) I. Giaever, Phys. Rev. Lett. 5, 147 (1960) und Phys. Rev. Lett. 5, 464 (1960)
- 38) I. Giaever, H.R. Hart und K. Megerle, Phys. Rev. 126, 941 (1962)
- 39) W.L. McMillan und J.M. Rowell in "Superconductivity", Hg. R.D. Parks (Marcel Dekker, New York 1969), S. 561
- 40) B.N. Brockhouse, T. Arase, G. Gaglioti, K.R. Rao und A.D.B. Woods, Phys. Rev. 128, 1099 (1962) und B.N. Brockhouse, E.D. Hallmann und S.C. Ng, in "Magnetic and Inelastic Scattering of Neutrons by Metals", Hg. T.J. Rowland und P.A. Beck (Gordon and Breach, New York, 1968)
- 41) R. Stedman, L. Almqvist, G. Nilson und G. Raunio, Phys. Rev. 162, 545 (1967) und Phys. Rev. 163, 567 (1967) und R. Stedman, L. Almqvist und G. Nilsson, Phys. Rev. 162, 549 (1967)
- 42) W.L. McMillan und J.M. Rowell, Phys. Rev. Lett. 14, 108 (1965)
- 43) S. Klaumünzer, G. Ischenko und H. Neumüller, Rad. Effects 35, 45 (1980)
- 44) S. Klaumünzer, Doktorarbeit, Universität Erlangen-Nürnberg, 1978
- 45) S. Klaumünzer, G. Ischenko, H. Adrian und H. Neumüller, J. Low Temp. Phys. 36, 89 (1979)
- 46) F.W. Young, Jr., in Ref. 3, S. 310
- 47) W. Schilling, G. Burger, K. Isebeck und H. Wenzel, in Ref. 1, S. 255
- 48) M. Lehmann, G. Saemann-Ischenko, H. Adrian, J. Bieger und P. Müller, Rad. Effects 46, 227 (1980)
- 49) H. Schröder und W. Schilling, Rad. Effects 30, 243 (1976)
- 50) E.A. Ryan, J.J. Jackson, R.C. Birtcher und Y.N. Lwin, Rad. Effects 33, 43 (1977)
- 51) K. Schroeder, in Springer Tracts in Modern Physics 87, Point Defects in Metals II (Springer Verlag 1980) S. 171
- 52) R.A. Johnson, J. Phys. F: Metal Phys. 3, 295 (1973)

- 53) P.C. Gehlen, I.R. Beeler and R.I. Jaffee (Hg.), Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects (Plenum Press, New York, 1972)
- 54) A. Seeger, E. Mann und R. van Jan, J. Phys. Chem. Solids 23, 639 (1962)
- 55) H. Wenzl, in Ref. 1, S. 363
- 56) A. Seeger, in Ref. 2, S. 493
- 57) W. Schüle, Rad. Effects Lett. 50, 93 (1980)
- 58) P. Ehrhardt, in Ref. 3, S. 200 und in Ref. 2, S. 302
- 59) P. Ehrhardt und U. Schlagheck, J. Phys. F: Metal Phys. 4, 1095 und 1589 (1974)
- 60) H. Trinkhaus, Phys. Status Solidi b51, 307 (1972); b54, 209 (1972) und Z. Naturforsch. 28a, 980 (1973)
- 61) H. Peisl, J. Appl. Cryst. 8, 143 (1975)
- 62) H.R. Schober und R. Zeller, in Ref. 3, S. 341
- 63) H.R. Schober, J. Phys. F: Metal Phys. 7, 1127 (1977)
- 64) R. Zeller und H.R. Schober, Proceedings of the International Conference on Lattice Dynamics, Hg. M. Balkanski (Flammarion Sciences, Paris, 1977)
- 65) P.H. Dederichs und R. Zeller, in Springer Tracts in Modern Physics 87, Point Defects in Metals II (Springer-Verlag, 1980) S. 1
- 66) R. Zeller, KFA Jülich Report, Jül-1259 (1975)
- 67) J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram und G.M. Vineyard, Phys. Rev. 120, 1229 (1960)
- 68) W. Mansel, G. Vogl, W. Vogl, H. Wenzel und D. Barb, Phys. Status Solidi 40, 461 (1970); G. Vogl, A. Schäfer, W. Mansel, J. Prechtel und W. Vogl, Phys. Status Solidi 59, 107 (1973)
- 69) H. Bernas, Phys. Scr. 11, 167 (1975)
- 70) T.H. Blewitt, M.A. Kirk und T.L. Scott in Ref. 2, S. 152

- 71) W. Schilling und H. Ullmaier, GSI-Bericht P2-75 (Darmstadt 1975)
- 72) P. Wienhold, KFA Jülich Bericht, Jül-1391 (1975)
- 73) W. Schilling, P. Ehrhart und K. Sonnenberg, in Ref. 2, S. 470
- 74) R.S. Averbach und K.L. Merkle, Phys. Rev. B16, 3860 (1977);
R.S. Averbach, K.L. Merkle und L.J. Thompson, Rad. Effects 51, 91 (1980)
- 75) J. Bardeen, L.N. Cooper, J.R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957)
- 76) R.E. Glover und M. Tinkham, Phys. Rev. 108, 243 (1957)
- 77) P. Morel und P.W. Anderson, Phys. Rev. 125, 1263 (1963)
- 78) W.L. McMillan, Phys. Rev. 167, 331 (1968)
- 79) L. Söldner, Diplomarbeit, Erlangen 1980
- 80) W. Steudtner, Diplomarbeit, Erlangen 1979
- 81) P. Urbainsky, Diplomarbeit, Erlangen 1977
- 82) Handbook of Chemistry and Physics, Hg. R.C. Weast, CRC Press Inc.,
Cleveland, USA (1976)
- 83) J.G. Adler, J.E. Jackson, Rev. Sci. Instr. 37, 1049 (1966)
- 84) J. Geerk, G. Heim und J. Kessler, Z. Physik 242, 86 (1971)
- 85) W. Dietsche und G. Wehr, Solid State Commun. 24, 591 (1977)
- 86) G. Ziemba und G. Bergmann, Z. Physik 237, 410 (1970)
- 87) J.D. Leslie, J.D. Chen und T.T. Chen, Can. J. Phys. 48, 2783 (1970)
- 88) K. Knorr und N. Barth, Solid State Commun. 8, 1085 (1970);
K. Knorr und N. Barth, J. Low Temp. Phys. 4, 469 (1971)
- 89) J.E. Jackson, C.V. Briscoe und H. Wühl, Physica 55, 447 (1971)
- 90) G. Bergmann, Physics Reports 27C, 160 (1976) und Zitate dort
- 91) R. Coates und F.W.J. Mitchell, Adv. in Physics 24, 593 (1975)

- 92) W. Buckel, M. Dietrich, G. Heim und J. Kessler, Z. Physik 245, 283 (1971)
- 93) K.H. Robrock und W. Schilling, J. Phys. F: Metal Phys. 6, 303 (1976)
- 94) B.V. Guerard, D. Grasse und J. Peisl, Phys. Rev. Lett. 44, 262 (1980)

Herrn Prof. Dr. G. Saemann-Ischenko gilt mein besonderer Dank für die Überlassung des Themas, stetige Unterstützung und fortwährendes Interesse für diese Arbeit.

Außer Herrn Prof. Saemann-Ischenko möchte ich vor allem Herrn Dr. S. Klau-münzer für klärende Diskussionen danken.

Für Hilfe bei der Durchführung der Bestrahlungsexperimente schulde ich neben den bereits Genannten den Herren Dipl.-Phys. W. Steudtner, Dr. H. Neu-müller, Dipl.-Phys. M. Lehmann, Dr. P. Müller und Dipl.-Phys. J. Bieger großen Dank.

Für ihre große Hilfsbereitschaft bei der Lösung von Problemen im Zusammenhang mit den verschiedenen Computern bin ich Herrn Dipl.-Phys. P. Urbainsky und Herrn F. Sönnel verbunden.

Frau Prof. J. Bostock (Massachusetts Institute of Technology) bin ich für die Überlassung ihrer Version des "McMillan-Programms" zur Berechnung der Eliashbergfunktion dankbar.

Frau R. Lutzke danke ich für die Niederschrift des Manuskriptes.

LEBENS LAUF

27.08.1948	geboren in Nürnberg Eltern: Georg Adrian, Gärtnermeister, und Ehefrau Annemarie, geb. Ulherr, Hausfrau
1954 - 1958	Besuch der Volksschule an der Wahlerstraße in Nürnberg
1958 - 1967	Besuch des Hardenberg-Gymnasiums in Fürth, Abitur im Juli 1967
Oktober 1967	Einberufung zum Pflichtwehrdienst beim Feldartilleriebataillon 115 in Neunburg v. Wald
29.11.1968	Eheschließung mit Brigitte Schuh
12.04.1969	Geburt des Sohnes Axel Bernhard
bis September 1969	Dienst als Soldat auf Zeit (2 Jahre)
November 1969	Immatrikulation an der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg für das Fach Physik
September 1971	Diplom-Vorprüfung in Physik Aufnahme als Stipendiat in die Studienstiftung des deutschen Volkes
Februar 1975	Diplom-Hauptprüfung in Physik
März 1975 - Februar 1976	Einjähriger Forschungsaufenthalt am Institut von Prof. B.T. Matthias, University of California, San Diego, La Jolla, USA
März 1976 - Februar 1978	Promotionsstipendium der Studienstiftung des deutschen Volkes
Seit März 1978	Verwalter der Dienstaeschäfte eines wissenschaftlichen Assistenten an der hiesigen Universität

